

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 2月20日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-043444

出 願 人

Applicant (s):

マツダ株式会社

2001年 3月30日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造

出証番号 出証特2001-3024405

【書類名】 特許願

【整理番号】 M20001016

【提出日】 平成13年 2月20日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B29B 9/14

【発明者】

    【住所又は居所】 広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号 マツダ株式会社内

    【氏名】 栃岡 孝宏

【発明者】

    【住所又は居所】 広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号 マツダ株式会社内

    【氏名】 藤 和久

【発明者】

    【住所又は居所】 広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号 マツダ株式会社内

    【氏名】 森脇 健二

【特許出願人】

    【識別番号】 000003137

    【氏名又は名称】 マツダ株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100077931

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 前田 弘

【選任した代理人】

    【識別番号】 100094134

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小山 廣毅

【選任した代理人】

    【識別番号】 100110939

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 竹内 宏

【選任した代理人】

【識別番号】 100110940

【弁理士】

【氏名又は名称】 嶋田 高久

【選任した代理人】

【識別番号】 100113262

【弁理士】

【氏名又は名称】 竹内 祐二

【選任した代理人】

【識別番号】 100115059

【弁理士】

【氏名又は名称】 今江 克実

【選任した代理人】

【識別番号】 100115510

【弁理士】

【氏名又は名称】 手島 勝

【選任した代理人】

【識別番号】 100115691

【弁理士】

【氏名又は名称】 藤田 篤史

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000- 88121

【出願日】 平成12年 3月28日

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000-357098

【出願日】 平成12年11月24日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014409

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0003928

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 成形用ガラス長繊維強化樹脂材料、該樹脂材料を射出成形してなる射出成形品及び該樹脂材料を用いた成形方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 マトリックスポリマーと、ガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分とを備え、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料において、

上記マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が 95% 以上であるポリプロピレン成分を有し、且つメルトフローレート (J I S K 7 2 1 0 温度: 230℃ 荷重: 21.18N) が 100~300g/10min であり、

上記ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率で 30~50% 含まれていることを特徴とする成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 2】 上記複合体の形態は、長さ 10~12mm の棒状のペレットであり、ガラス長繊維がその長手方向に配向していることを特徴とする請求項 1 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 3】 上記親和性付与成分は、上記ガラス長繊維の表面処理に用いられているカップリング剤と化学結合する官能基を有する酸変性ポリプロピレンであることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 4】 上記酸変性ポリプロピレンは、無水マレイン酸変性ポリプロピレン及びアクリル酸変性ポリプロピレンのうち少なくとも一方を構成成分として有することを特徴とする請求項 3 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 5】 上記マトリックスポリマーは、ホモポリプロピレンであることを特徴とする請求項 1 乃至 4 のいずれかーに記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 6】 ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 95% 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されていることを

特徴とする請求項 5 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 7】 アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるポリプロピレン成分を含むマトリックスポリマーと、ガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分とを有し、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなるマスターバッチと、

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるポリプロピレン成分を有してなる希釈ポリマーと、

を備えた成形用ガラス長繊維強化樹脂材料であって、

上記マスターバッチのマトリックスポリマーは、そのメルトフローレートが上記希釈ポリマーのメルトフローレートの 2 倍よりも大きく、

上記ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率で 3 0 ~ 5 0 % 含まれていることを特徴とする成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 8】 上記マスターバッチのマトリックスポリマーは、そのメルトフローレート ( J I S K 7 2 1 0 温度 : 2 3 0 ° C 荷重 : 2 1 . 1 8 N ) が 1 0 0 ~ 3 0 0 g / 1 0 m i n であることを特徴とする請求項 7 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 9】 射出成形に用いられることを特徴とする請求項 1 乃至 8 のいずれかに記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 1 0】 ポリプロピレン成分を有するマトリックスポリマーと、該マトリックスポリマーに全体質量に対して質量百分率で 3 0 ~ 5 0 % 含まれるガラス長繊維とを備えた成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形してなる射出成形品であって、

上記含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が 2 5 K J / m<sup>2</sup> 以上であることを特徴とする射出成形品。

【請求項 1 1】 含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が 2 5 K J / m<sup>2</sup> 以上であることを特徴とする請求項 1 乃至 9 のいずれかに記載の成形用ガラス長繊維

強化樹脂材料を射出成形してなる射出成形品。

【請求項 1 2】 車両のシュラウドモジュール、ドアモジュール、リフトゲートモジュール、バンパーモジュール、ステップ部材及び構造インストルメントパネル部材のいずれかであることを特徴とする請求項 1 0 又は 1 1 に記載の射出成形品。

【請求項 1 3】 請求項 1 乃至 9 のいずれか一に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料における樹脂成分を加熱溶融させ、該溶融物をせん断流動させながら混練した後、所定形状に成形することを特徴とするガラス長繊維強化樹脂成形品の成形方法。

【請求項 1 4】 樹脂加熱手段、混練用スクリュー及び成形用金型を備えた射出成形機を用いて射出成形品を成形する方法であって、

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であり且つメルトフローレート ( J I S K 7 2 1 0 温度 : 2 3 0 ° C 荷重 : 2 1 . 1 8 N ) が 1 0 0 ~ 3 0 0 g / 1 0 m i n であるホモポリプロピレンとガラス長繊維とが複合して形成され該ガラス長繊維が長手方向に配向した長さ 1 0 ~ 1 2 m m の棒状ペレットを有する成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、上記射出成形機に投入するステップと、

上記射出成形機に投入した樹脂材料を、上記樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に上記混練用スクリューを回転速度 2 0 ~ 4 0 r p m で回転させることにより混練するステップと、

上記加熱及び混練した樹脂材料を、上記成形用金型に射出充填時間 2 . 5 ~ 7 . 0 秒で射出することにより、ガラス長繊維が全体質量に対して質量百分率で 3 0 ~ 5 0 % 含まれると共にその重量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が 2 5 K J / m <sup>2</sup> 以上である射出成形品を成形するステップと、

を備えたことを特徴とする射出成形品の成形方法。

【請求項 1 5】 樹脂加熱手段、混練用スクリュー及び成形用金型を備えた射出成形機を用いて車両のシュラウドモジュールをなす射出成形品を成形する方法であって、

アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であり且つメルトフローレート(JIS K7210 温度: 230℃ 荷重: 21.18N)が100~300g/10minであるホモポリプロピレンとガラス長繊維とが複合して形成され該ガラス長繊維が長手方向に配向した長さ10~12mmの棒状ペレットを有する成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、上記射出成形機に投入するステップと、

上記射出成形機に投入した樹脂材料を、上記樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に上記混練用スクリューを回転させることにより混練するステップと、

上記加熱及び混練した樹脂材料を、上記成形用金型に射出することにより、ガラス長繊維が全体質量に対して質量百分率で30~50%含まれると共にその重量平均繊維長が4mm以上であり、且つ曲げ弾性率が5GPa以上、アイゾット衝撃値が25KJ/m<sup>2</sup>以上である車両のシュラウドモジュールを成形するステップと、

を備えたことを特徴とする車両のシュラウドモジュールをなす射出成形品の成形方法。

【請求項16】 上記射出成形品は、車両のシュラウドモジュールであることを特徴とする請求項14に記載の射出成形品の成形方法。

【請求項17】 上記成形用ガラス長繊維強化樹脂材料は、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されていることを特徴とする請求項14乃至16のいずれかに記載の射出成形品の成形方法。

【請求項18】 樹脂加熱手段、混練用スクリュー及び成形用金型を備えた射出成形機を用いて射出成形品を成形する方法であって、

アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し且つメルトフローレート(JIS K7210 温度: 230℃ 荷重: 21.18N)が100~300g/10minであるマトリックスポリマーと、全体質量に対して質量百分率で30~50%含まれるガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分とを備



え、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を準備するステップと、

上記樹脂材料を、上記射出成形機に投入するステップと、

上記射出成形機に投入した樹脂材料を、上記樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に上記混練用スクリーを回転速度 20～60 r p m で回転させることにより混練するステップと、

上記加熱及び混練した樹脂材料を、背圧  $2.94 \times 10^5 \sim 3.92 \times 10^5$  P a、射出充填時間 2.0～7.0 秒、射出率 70～90% 及び射出圧力 1.86～3.24 M P a の条件で上記成形用金型に射出するステップと、

上記成形用金型内に射出された樹脂材料を、上記射出圧力の 20～45% の圧力で 9～20 秒間保圧するステップと、

上記成形用金型を型開きして射出成形品を取り出すステップと、  
を備えたことを特徴とする射出成形品の成形方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

##### 【発明の属する技術分野】

本発明は、射出成形等に用いられる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料、その樹脂材料を射出成形してなる射出成形品及びその樹脂材料を用いた成形方法に関する。

##### 【0002】

##### 【従来の技術】

自動車用部品等の各種工業用品の材料として、機械的特性、成形加工性等が極めて優れていることから、長さ 10 m m 程度のガラス長繊維と樹脂とが複合したガラス長繊維強化樹脂材料が広く使用されている。

##### 【0003】

そして、かかるガラス長繊維強化樹脂材料として、特開平 7 - 2 3 2 3 2 4 号公報には、メルトフローレート（以後「M F R」と称する）が  $70 \sim 300$  g / 10 m i n である変性ポリプロピレン樹脂を溶融させ、それをガラス繊維束に含浸させた後、長さ 2～50 m m に切断して得られるペレットをマスターバッチと

し、これをポリプロピレン樹脂で希釈したものが記載されており、かかる構成により、引き抜き法で製造されるマスターバッチ中のガラス長繊維の分散性向上等を図り、マスターバッチをポリプロピレン樹脂で希釈することによる成形品の強度低下を防止することが開示されている。

## 【 0 0 0 4 】

また、特公平 3 - 2 5 3 4 0 号公報には、低分子量の熱可塑性ポリマーと体積百分率で 3 0 % 以上の強化用ガラスフィラメントとを含むガラス長繊維強化ペレットと、このペレットを構成する熱可塑性ポリマーよりも高分子量の熱可塑性ポリマーとをブレンドしたものが記載されており、かかる構成により、ガラス長繊維の樹脂による濡れ性の向上を図り、成形品の曲げ弾性率を向上させることが開示されている。

## 【 0 0 0 5 】

さらに、特開平 1 1 - 1 5 2 0 6 2 号公報には、熱可塑性樹脂（ポリプロピレン、エチレン・プロピレンブロック共重合体等）をマトリックスとし、互いに平行に配列されたガラス繊維を 2 0 ~ 8 0 質量% 含有する全長 2 ~ 1 0 0 m m のガラス繊維含有熱可塑性樹脂ペレットを原材料に含み、その原材料を射出成形してなる自動車用フロントエンドであって、ガラス繊維の含有率が 1 5 ~ 5 0 質量% であり且つその重量平均繊維長が 1 ~ 2 0 m m であるものが開示されており、かかる構成により、優れた振動疲労特性及び耐衝撃性が確保されるとともに、反り変形が抑制される、との内容が記載されている。

## 【 0 0 0 6 】

そして、第 2 7 2 1 7 0 2 号特許公報には、重合品プロピレン重合体（プロピレンホモポリマー等）と補強材（ガラス繊維等）とをブレンドした組成物であって、重合品プロピレン重合体は約 5 5 ~ 4 3 0 g / 1 0 分の M F R を有し、補強材は重合品プロピレン重合体材料及び補強材の全質量を基にして約 2 0 ~ 6 5 % 含まれるものが開示されており、かかる構成により、低 M F R の重合品重合体で作られた繊維強化組成物より良好な流れ特性を有し、同時に、成形品の強度およびこわさに関して、それらの特性の低下が抑制される、との内容が記載されている。

## 【 0 0 0 7 】

特開平 6 - 3 4 0 7 8 4 号公報には、実質的に全てが少なくとも 3 mm 以上の長さを有し、直径が 2 0  $\mu$  m 以下の強化用ガラス繊維 2 0 ~ 8 0 質量部と、少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体の MFR が 5 0 g / 1 0 分以上の結晶性プロピレン系重合体（プロピレン単独重合体、エチレン・プロピレン共重合体等） 8 0 ~ 2 0 質量部とからなり、強化用ガラス繊維が重合体成分中に互いにほぼ平行な状態で配列して存在しているガラス繊維結束構造物を 3 ~ 9 7 質量%と、MFR が 5 0 g / 1 0 分以上の結晶性プロピレン系重合体（プロピレン単独重合体、エチレン・プロピレン共重合体等）を 9 7 ~ 3 %と、から構成されたプロピレン系耐熱樹脂成形材料が開示されており、かかる構成によれば、射出成形等により得られる成形品は、耐熱性、成形性、耐成形反りが優れ、且つ軽量であるために、例えば、軽量で高度な耐熱性、成形寸法安定性が求められる自動車部品に適用することができる、との内容が記載されている。また、エチレン系エラストマー（エチレン・プロピレン二元共重合ゴム（EPM）、エチレン・プロピレン・非共役ジエン三元共重合ゴム（EPDM）等）及びスチレン系エラストマー（水素添加スチレンーブタジエンブロック共重合体等）から選ばれた少なくとも一種のエラストマーをさらに添加することによって、成形品の衝撃強度や成形反り抑制性を向上させることができる、との内容も記載されている。

## 【 0 0 0 8 】

特開平 1 1 - 2 2 8 7 5 9 号公報には、MFR が 1 ~ 1 0 0 0 g / 1 0 分であり、プロピレン単独重合体部分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上で、且つクロス分別クロマトグラフによる 4 0  $^{\circ}$ C 以下の溶出量が 2 . 0 質量%以下であるプロピレン系樹脂（プロピレン単独重合体、エチレン・プロピレンブロック共重合体等） 9 0 ~ 3 0 質量%と、MFR が 0 . 1 ~ 1 0 0 g / 1 0 分であるエラストマー（エチレン・プロピレン共重合体ゴム（EPR）、エチレン・プロピレン・ジエン共重合ゴム（EPDM）等） 1 0 ~ 7 0 質量%と、そのプロピレン系樹脂及びエラストマーの総質量に対して 5 ~ 7 5 質量%の無機フィラー（ガラス繊維等）と、が混練されてなるプロピレン系樹脂組成物が開示されており

、かかる構成によれば、射出成形等により成形された成形品は、耐傷付き性及び曲げ弾性率が著しく改良されることとなる、との内容が記載されている。

【 0 0 0 9 】

【発明が解決しようとする課題】

ところで、樹脂成形品の成形方法として、プレス成形法と射出成形法とを挙げることができる。これらを比較してみると、プレス成形法では複雑な形状を成形するのが困難であるのに対し、複雑な形状も容易に成形できる射出成形法では成形の自由度が高い。また、プレス成形法では開口部等は打ち抜き等により後加工する必要があるのに対し、かかる後加工が不要である射出成形法では加工性が良好である。さらに、プレス成形法では樹脂板（ブランク）の金型へのセット、加熱及び圧縮という工程を経る必要があるのに対し、熔融樹脂を金型に射出して連続的に成形を行える射出成形法では生産性が高い。従って、以上の各観点からは、射出成形法の方がプレス成形法に比べて優れているといえることができる。

【 0 0 1 0 】

しかしながら、同一のガラス長繊維強化樹脂材料を用いて成形を行った場合、図 1 6 に示すように、射出成形法で成形された成形品とプレス成形法により成形された成形品とでは同等レベルの曲げ弾性率を有するものの、前者は後者に比較して衝撃強度（アイゾット衝撃値）が著しく低いという問題がある。樹脂成形品の曲げ弾性率は含有するガラス長繊維量に依存するのに対し、衝撃強度は含有するガラス長繊維の繊維長に依存することが知られているが、上記現象は、射出成形法における材料投入から成形に至るまでの間にガラス長繊維が折損されて短くなっていることを意味するものである。事実、プレス成形法では、繊維長 1 0 m m 強のガラス長繊維を有する樹脂材料を用いて成形した場合、成形品から抽出したガラス長繊維の長さが約 1 0 m m であるのに対し、射出成形法では繊維長 1 0 m m の長繊維を有する樹脂材料を用いて成形した場合、成形品から抽出したガラス長繊維の長さが約 0 . 9 m m となっているという実験結果が得られている。そして、かかるガラス長繊維の折損は、図 1 7 に示すように、射出成型機のシリンダー内に樹脂の固相 7 と熔融相 8 とが形成され、その固相 7 と熔融相 8 との界面での樹脂相間のせん断によりガラス長繊維が曲げられるために起こる、又は熔融

相 8 における樹脂のせん断流動中の座屈によりガラス長繊維が曲げられるために起こる、と考えられている。

【 0 0 1 1 】

かかる問題に対して、上記特開平 7 - 2 3 2 3 2 4 号公報に記載されているようにガラス長繊維の分散性及び接着性を向上させることによって衝撃強度の向上を図ることができるが、図 1 8 に示すように、プレス成形品の水準のものを得ることはできない。また、ポリプロピレンエラストマーやポリエチレンエラストマーを添加することによってさらに衝撃強度の向上を図ることもできるが、図 1 8 に示すように、かかる手段では曲げ弾性率が低下するという問題が生じる。

【 0 0 1 2 】

本発明は、かかる点に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、成形加工時におけるガラス長繊維の折損を抑制でき、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品を成形することができる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料、及びその樹脂材料を射出成形してなる射出成形品、並びにその樹脂材料を用いた成形方法を提供することにある。

【 0 0 1 3 】

【課題を解決するための手段】

本出願の発明は、成形用ガラス長繊維強化樹脂材料のマトリックスポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率の高いポリプロピレン成分を有するものを用いて結晶化度を高めると共に低溶融粘度のものを用いて成形加工時におけるガラス長繊維の折損を抑制することにより、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品の成形を可能としたものである。また、本出願の他の発明は、相対的に低粘度のマトリックスポリマーとガラス長繊維とが複合したマスターバッチに相対的に高粘度の希釈ポリマーを混合して成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を構成し、マトリックスポリマーでガラス長繊維を被覆保護してその折損を抑止すると共に希釈ポリマーで樹脂部分の高強度化を図ることにより、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品の成形を可能としたものである。

【 0 0 1 4 】

具体的には、本出願の発明は、

マトリックスポリマーと、ガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との親和性付与成分とを備え、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料において、

上記マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し、且つMFR (JIS K7210 (ASTM D1238) 温度: 230℃ 荷重: 21.18N 以下同様) が100～300g/10minであり、

上記ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率で30～50%含まれていることを特徴とする。

#### 【0015】

上記の構成によれば、マトリックスポリマーのMFRが適度に高い水準にあるので(分子量が低い)、例えば射出成形機のシリンダー内において樹脂材料の溶融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と溶融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑止されることとなって衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマーの溶融粘度が低いので、マトリックスポリマーとガラス長繊維との濡れ性が良好なものとなる。また、マトリックスポリマー中のポリプロピレン成分はアイソタクチックペンタッド分率が95%以上である、すなわち、ポリプロピレン成分におけるメチル基の大部分がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となっているので、ポリプロピレン成分同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなり、低分子量のマトリックスポリマーにおいても高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

#### 【0016】

ここで、MFRはポリマーの溶融粘度の指標となるものであり、JIS K7210 (ASTM D1238) に準ずる円管押出流10分間当たりのポリマー吐出量のグラム数である。円管押出の条件は各ポリマー種により試験温度及び試験荷重が選定されるが、本出願におけるMFRは、試験温度が230℃、試験荷重が21.18Nの条件下で計測されるものである。また、ポリマーの溶融粘度

は一般に分子量に依存するが、MFRが $100\text{ g}/10\text{ min}$ であるポリプロピレンでは分子量が約12万5千に、 $300\text{ g}/10\text{ min}$ では約7万にそれぞれ相当するものである。そして、本出願の発明においては、MFRが $100\sim 300\text{ g}/10\text{ min}$ であることを要するが、これが $100\text{ g}/10\text{ min}$ より低い場合、マトリックスポリマーの溶融粘度が高くなるためガラス長繊維の折損を抑止することができず、衝撃強度の高い成形品を得ることができない。他方、MFRが $300\text{ g}/10\text{ min}$ より高い場合、エアの巻き込みにより成形品にボイドを生じ、成形品の衝撃強度が却って低いものとなってしまう。

#### 【0017】

また、アイソタクチックペンタッド分率は、ポリマーの立体規則性（タクチシチー）の指標となるものである。ポリプロピレンは、モノマー単位に1つのメチル基を有するため立体異性を生じる。そして、ポリマーチェーンに沿ったメチル基の立体配置がランダムなものをアタクチック、交互に立体配置が異なるものをシンジオタクチック、立体配置が同じものをアイソタクチックという。また、ポリプロピレンにおける連続する2つのモノマー単位、すなわち、2連子（ダイアド）を見たとき、これらのメチル基の立体配置が同じものをメソ（m）、異なるものをラセミ（r）という。アイソタクチックペンタッド分率は、任意の5つの連続するモノマー単位、すなわち、5連子（pentad）を見たときのメチル基の立体配置が全て同じ（メソが4つ連続して配列（mmmm）した状態）である割合をいい、mmmm分率ともいう。従って、このアイソタクチックペンタッド分率が高いポリプロピレンは、固化時に分子が規則的に配列して結晶化度が高くなり、それによって成形品の曲げ弾性率も高いものとなる。5連子（pentad）におけるメチル基の立体配置については、高分解能 $^{13}\text{C}$ NMRスペクトルの共鳴領域により各立体配置の帰属が明確化されると共に、その強度により割合が定量化されることとなり、アイソタクチックペンタッド分率は下記式によって算出される。

#### 【0018】

## 【式 1】

$$\text{アイソタクチックペンタッド分率} = \frac{\text{mmmm}}{\text{mmmm} + \text{mmmr} + \text{rmmr} + \text{mmrm} + \text{rrrr} + \text{mrrr} + \text{rrmr} + \text{rrrr} + \text{mrrr} + \text{mrrm}} \times 100$$

## 【0019】

そして、本出願の発明においては、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることを要するが、これが95%より低い場合、高い曲げ弾性率の成形品を得ることができない。

## 【0020】

さらに、ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率が30～50%であることを要するが、これが30%より低い場合、高い曲げ弾性率の成形品を得ることができない。他方、質量百分率が50%より高い場合、成形品におけるガラス長繊維含有量が高くなるので、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度を備えた成形品を得ることも可能であるが、樹脂材料の粘度が上昇して流動性が低下することとなり、低熔融粘度のマトリックスポリマーを適用することによりガラス長繊維の折損を抑制するという本出願の発明の作用が適正に営まれず、成形品の耐久性等の面で支障をきたす虞がある。特に、大型の成形品を成形するために樹脂材料を高圧で成形用金型に押し込むような場合、成形機中及び金型内でガラス長繊維が折損する確率が高くなる。本出願の発明の特徴は、ガラス長繊維含有量が質量百分率で30～50%という範囲において高い曲げ弾性率と高い衝撃強度を備えた成形品が実現される点にあるものである。

## 【0021】

本出願発明に係る成形用ガラス長繊維強化樹脂材料では、マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体をマスターバッチとし、これをホモポリプロピレン等で希釈して成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を構成するようにしてもよく、また、この複合体自体を成形用ガラス長繊維強化樹脂材料として構成するようにしてもよい。

## 【0022】

また、マトリックスポリマーとガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分は、ガラス長繊維の表面処理に用いられているカップリング剤と化学結



合する官能基を有する酸変性ポリプロピレンである構成であってもよい。かかる構成によれば、酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合すると共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーのポリプロピレン成分に拡散することとなり、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合が形成されることとなる。そして、マトリックスポリマーとガラス長繊維との間に高い親和性が付与され、それにマトリックスポリマーの溶融粘度が小さい（分子量が小さい）ことも相俟って、ガラス長繊維間にマトリックスポリマーが十分に含浸し、マトリックスポリマー中でのガラス長繊維の分散が良好なものとなる。ここで、酸変性ポリプロピレンは、マトリックスポリマーと共に溶融させてガラス長繊維と複合させるようにして含有させるようにしてもよく、マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体と共に成形機に投入して混合するようにしてもよい。また、かかる酸変性ポリプロピレンとしては、無水マレイン酸、アクリル酸、又はカルボン酸変性のものの他、官能基として水酸基を有するものであってもよい。好適には無水マレイン酸変性ポリプロピレン及びアクリル酸変性ポリプロピレンのうち少なくとも一方を構成成分とするものが用いられる。

## 【 0 0 2 3 】

そして、マトリックスポリマーとガラス長繊維、又はそれらと親和性付与成分との複合体の形態は、特に限定されるものではないが、長さ 1 0 ～ 1 2 m m の棒状のペレットであって、ガラス長繊維がその長手方向に配向している構成であることが好ましい。かかる構成によれば、成形品のガラス長繊維含有量にバラツキが生じることが無く、且つ十分な衝撃強度を有効に確保することができるからである。すなわち、ペレットの長さが 1 0 m m 未満では、成形品に含まれるガラス長繊維も短くなり、十分な衝撃強度を得られない。また、ペレットの長さが 1 2 m m より長くなると、射出成型機の方法投入口であるホッパーで分級やブリッジが生じ、成形品のガラス長繊維含有量にバラツキを生じることとなる。かかる棒状のペレットは、マトリックスポリマー等を溶融させた浴中にガラス繊維束を浸漬してガラス繊維間に溶融物を含浸させ、これを固化させた後に長手方向に切断する、いわゆる引き抜き法によって製造することができる。

## 【 0 0 2 4 】

また、マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し、且つMFRが100～300g/10minであるものであれば、特に限定されるものではなく、エチレン・プロピレンブロック共重合体等であってもよく、勿論ホモポリプロピレンであってもよい。

## 【0025】

そして、マトリックスポリマーがホモポリプロピレンである場合には、それにポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されている構成であってもよい。かかる構成によれば、エチレン・プロピレンブロック共重合体が、ポリプロピレン成分中にポリエチレン成分のドメインが形成された海-島構造となっているため、加えられる衝撃がポリプロピレン成分とポリエチレン成分との境界部分でエネルギー吸収されることとなり、衝撃強度のさらなる向上が図られることとなる。ここで、このエチレン・プロピレンブロック共重合体は、マトリックスポリマーと共に溶融させてガラス長繊維と複合させるようにして混合してもよく、また、マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体のマスターバッチと共に成形機に投入して混合してもよい。エチレン・プロピレンブロック共重合体のポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることを要するのは、上記と同様、95%より低ければ高い曲げ弾性率の成形品を得ることができないからである。

## 【0026】

そして、本出願の他の発明は、

アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を含むマトリックスポリマーと、ガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分とを有し、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなるマスターバッチと

アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有してなる希釈ポリマーと、  
を備えた成形用ガラス長繊維強化樹脂材料であって、

上記マスターバッチのマトリックスポリマーは、そのMFRが上記希釈ポリマーのMFRの2倍よりも大きく、

上記ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率で30～50%含まれていることを特徴とする。

【0027】

上記の構成によれば、マスターバッチのマトリックスポリマーのMFRが希釈ポリマーのMFRの2倍よりも大きいので、両者は大きな粘度差を有し、しかも、前者が後者よりも粘度が低いことから前者の方がガラス長繊維に対する濡れ性がより高く、例えば、射出成形機内で樹脂材料が加熱及び混練された際には、ガラス長繊維がマトリックスポリマーで被覆保護された状態が維持されることとなつてその折損が有効に抑止されることとなり、衝撃強度の高い成形品を得ることができる。また、マトリックスポリマー及び希釈ポリマーのいずれのポリプロピレン成分もアイソタクチックペンタッド分率が95%以上である、すなわち、メチル基の大部分がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となっており、ポリプロピレン分子同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなるのに加え、MFRがマトリックスポリマーのものよりも低い希釈ポリマーが樹脂成分の高強度化に寄与することとなるので、それによって高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

【0028】

さらに、マトリックスポリマーのMFRが希釈ポリマーのMFRの2倍よりも大きいので、両者が大きな粘度差を有することによってガラス長繊維がマトリックスポリマーにより被覆保護され、その過度の分散が抑止されて成形品表面に露出するものが少なくなり、しかも、マトリックスポリマーが希釈ポリマーよりも低粘度で流動速度が高いことから、流動路内壁にマトリックスポリマー層を形成しながら流動し、従つて、樹脂材料がキャビティ内に充填される際にもキャビティ内壁にマトリックスポリマー層が形成され、その結果、成形品にマトリックスポリマーによる厚肉のスキン層が形成されることとなり、外観意匠性の極めて良好な成形品を得ることができる。

【0029】

ここで、マスターバッチのマトリックスポリマー及び希釈ポリマーとしては、ホモポリプロピレンやエチレン・プロピレンブロック共重合体が好適に使用される。

#### 【 0 0 3 0 】

また、この場合、マスターバッチのマトリックスポリマーは、そのMFRが100～300 g/10 minであることが望ましい。かかる構成によれば、マトリックスポリマーのMFRが適度に高い水準となるので（分子量が低い）、例えば射出成形機のシリンダー内において樹脂材料の溶融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と溶融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑止されることとなる。また、マトリックスポリマーの溶融粘度が低いので、そのガラス長繊維に対する濡れ性がより良好なものとなる。

#### 【 0 0 3 1 】

以上の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料は、プレス成形、単軸押出成形、2軸押出成形、射出成形等いずれの成形方法にも適用できるものであるが、シリンダー内で樹脂成分を加熱溶融させ、混練用スクリーによってその溶融物をせん断流動させながら混練する押出成形や射出成形のように、樹脂材料に極めて過酷な履歴を与える成形方法において、特に著しい作用・効果を奏するものである。

#### 【 0 0 3 2 】

また、ガラス長繊維の含有率が30～50%であるガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を射出成形して得られる射出成形品として要求される特性としては、含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が4 mm以上で、且つ曲げ弾性率が5 GPa以上、アイゾット衝撃値が25 KJ/m<sup>2</sup>以上であり、かかるレベルは、従来達成することができなかったものである。しかしながら、かかる射出成形品を得るための一手段として、本出願の発明に係る成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形に適用することを挙げることができる。そして、そのようにして成形できるものとしては、特に限定されるものではないが、車両のシュラウドモジュール、ドアモジュール、リフトゲートモジュール、バンパーモジュール、ステップ部材及び構造インストルメントパネル部材等を挙げることができる。

## 【 0 0 3 3 】

ここで、重量平均繊維長とは、成形品から所定本数（500～1500本）のガラス長繊維を抽出し、それらの各繊維長を測定して下記式に基づいて算出されるものである。

## 【 0 0 3 4 】

【式2】

$$\text{重量平均繊維長} = \frac{\sum (\text{繊維長})^2}{\sum \text{繊維長}}$$

## 【 0 0 3 5 】

また、アイゾット衝撃値は、JIS K7110（ASTM D256）に準ずるアイゾット衝撃試験方法において試験片を破壊するのに要した吸収エネルギーを試験片の切り欠き部の元の断面積で除した値であり、衝撃強度の指標となるものである。

## 【 0 0 3 6 】

そして、樹脂加熱手段、混練用スクリュー及び成形用金型を備えた射出成形機を用いてかかる射出成形品を成形する方法としては、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であり且つMFRが100～300g/10minであるホモポリプロピレンとガラス長繊維とが複合して形成されそのガラス長繊維が長手方向に配向した長さ10～12mmの棒状ペレットを有する成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、射出成形機に投入するステップと、射出成形機に投入した樹脂材料を、樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に混練用スクリューを回転させることにより混練するステップと、加熱及び混練した樹脂材料を、成形用金型に射出することにより、ガラス長繊維が全体質量に対して質量百分率で30～50%含まれると共にその重量平均繊維長が4mm以上であり、且つ曲げ弾性率が5GPa以上、アイゾット衝撃値が25KJ/m<sup>2</sup>以上である射出成形品を成形するステップと、を備えたものが挙げられる。ここで、樹脂加熱手段は、通常、射出成形機のシリンダーに装備されたヒータによりその機能が果たされる。

## 【 0 0 3 7 】

この方法において、ガラス長繊維の折損を抑止するためには、混練用スクリュウの回転速度を 2 0 ~ 4 0 r p m とするのが好適であり、また、成形用金型への樹脂材料の射出充填時間を 2 . 5 ~ 7 . 0 秒とするのが好適である。

## 【 0 0 3 8 】

また、この方法によって、高い衝撃強度を要する車両のシュラウドモジュールをなす射出成形品を成形することもでき、その場合も上記の混練用スクリュウの回転速度及び成形用金型への樹脂材料の射出充填時間の条件が満たされることが好ましい。

## 【 0 0 3 9 】

さらに、この方法において、成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されたものとするにより、射出成形品の衝撃強度のさらなる向上を図るようにしてもよい。

## 【 0 0 4 0 】

また、アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるポリプロピレン成分を有し且つ M F R が 1 0 0 ~ 3 0 0 g / 1 0 m i n であるマトリックスポリマーと、全体質量に対して質量百分率で 3 0 ~ 5 0 % 含まれるガラス長繊維と、マトリックスポリマーとガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分とを備え、少なくともマトリックスポリマーとガラス長繊維とが複合体を形成してなる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を用い、より詳細に条件設定した成形方法としては、かかる樹脂材料を準備するステップと、その樹脂材料を射出成形機に投入するステップと、射出成形機に投入した樹脂材料を樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に混練用スクリュウを回転速度 2 0 ~ 6 0 r p m で回転させることにより混練するステップと、加熱及び混練した樹脂材料を、背圧  $2.94 \times 10^5 \sim 3.92 \times 10^5$  P a、射出充填時間 2 . 0 ~ 7 . 0 秒、射出率 7 0 ~ 9 0 % 及び射出圧力 1 . 8 6 ~ 3 . 2 4 M P a の条件で成形用金型に射出するステップと、成形用金型内に射出された樹脂材料を射出圧力の 2 0 ~ 4 5 % の圧力で 9 ~ 2 0 秒間保圧するステップと、成形用金型を型開き

して射出成形品を取り出すステップと、を備えたものが挙げられる。

【 0 0 4 1 】

ここで、背圧とは、射出成形機のシリンダ先端で流路が狭くなっていることによって溶融した樹脂材料にこれをシリンダ上流に押し戻そうとするように作用する圧力をいう。射出充填時間とは、溶融した樹脂材料の成形用金型への流入開始から充填完了までの時間をいう。射出率とは、射出成形機のシリンダ先端に溜まった溶融した樹脂材料のうち、1回の射出で成形用金型に射出充填される樹脂材料の質量百分率をいう。射出圧力とは、射出成形機において、成形用金型に射出充填される際に溶融した樹脂材料に作用する圧力をいう。保圧とは、成形用金型に樹脂材料を射出充填した後、そのまましばらく所定圧力を保持することをいう。

【 0 0 4 2 】

また、背圧が  $2.94 \times 10^5 \text{ Pa}$  よりも小さいと樹脂材料が成形用金型のゲート部で固化してしまい完全な射出成形品が得られない一方、背圧が  $3.92 \times 10^5 \text{ Pa}$  よりも大きいと樹脂材料の射出充填過程においてガラス長繊維の折損が著しいものになってしまう。同様に、射出率が70%より小さいと樹脂材料が成形用金型のゲート部で固化してしまい完全な射出成形品が得られない一方、射出率が90%より大きいと樹脂材料の射出充填過程においてガラス長繊維の折損が著しいものになってしまう。さらに、保圧が射出圧力の20%より低いと射出成形品にひけマークが生じ易くなる一方、保圧が射出圧力の45%より高いとガラス長繊維の折損が生じ易くなる。

【 0 0 4 3 】

【発明の効果】

以上説明したように本出願の発明によれば、マトリックスポリマーのMFRが適度に高い水準にあるので（分子量が低い）、例えば射出成形機のシリンダー内において樹脂材料の溶融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と溶融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑止されることとなって衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマーの溶融粘度が低いので、ガラス長繊維と

の濡れ性が良好なものとすることができる。また、マトリックスポリマー中のポリプロピレン成分はアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるので、ポリプロピレン成分同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなり、低分子量のマトリックスポリマーにおいても高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

【0044】

また、マトリックスポリマーとガラス長繊維、又はそれらと親和性付与成分との複合体の形態を、長さ10～12mmの棒状のペレットであって、ガラス長繊維がその長手方向に配向している構成とすることにより、成形品のガラス長繊維含有量にバラツキが生じることが無く、且つ十分な衝撃強度を有効に確保することができる。

【0045】

また、親和性付与成分を、ガラス長繊維の表面処理に用いられているカップリング剤と化学結合する官能基を有する酸変性ポリプロピレンで構成とすることにより、酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合を形成すると共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーのポリプロピレン成分に拡散することとなり、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合を形成させることができる。加えて、マトリックスポリマーとガラス長繊維との間に高い親和性が付与され、これにマトリックスポリマーの溶融粘度が小さい（分子量が小さい）ことも相俟って、ガラス長繊維間にマトリックスポリマーが十分に含浸し、マトリックスポリマー中でのガラス長繊維の分散を良好なものとすることができる。

【0046】

また、マトリックスポリマーがホモポリプロピレンである場合に、それにポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されている構成とすることにより、エチレン・プロピレンブロック共重合体がポリプロピレン成分中にポリエチレン成分のドメインが形成された海-島構造となっているため、加えられる衝撃がポリプロピレン成分とポリエチレン成分との境界部分でエネルギー吸収されることとなり



、衝撃強度のさらなる向上を図ることができる。

【 0 0 4 7 】

また、本出願の発明に係る成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形することにより、含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が4 mm以上であり、且つ曲げ弾性率が5 GPa以上、アイゾット衝撃値が25 KJ/m<sup>2</sup>以上である射出成形品を得ることができる。具体的には、車両のシュラウドモジュール、ドアモジュール、リフトゲートモジュール、バンパーモジュール、ステップ部材又は構造インストルメントパネル部材等としても適用可能な物理特性を有する射出成形品を得ることができる。

【 0 0 4 8 】

また、本出願の他の発明によれば、マスターバッチのマトリックスポリマーのMFRが希釈ポリマーのMFRの2倍よりも大きいので、両者は大きな粘度差を有し、しかも、前者が後者よりも粘度が低いことから前者の方がガラス長繊維に対する濡れ性がより高く、成形時には、ガラス長繊維がマトリックスポリマーで被覆保護された状態が維持されることとなり、その折損が有効に抑止されることとなり、衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマー及び希釈ポリマーはともにポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるので、ポリプロピレン分子同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなるのに加え、高粘度の希釈ポリマーが樹脂成分の高強度化に寄与することとなり、それによって高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。さらに、マトリックスポリマーのMFRが希釈ポリマーのMFRの2倍よりも大きいので、両者が大きな粘度差を有することによってガラス長繊維がマトリックスポリマーにより被覆保護され、その過度の分散が抑止されて成形品表面に露出するものが少なくなり、しかも、希釈ポリマーよりもマトリックスポリマーの方が低粘度で流動速度が高いことから、樹脂材料がキャビティ内に充填される際にキャビティ内壁にマトリックスポリマー層が形成され、その結果、成形品にマトリックスポリマーによる厚肉のスキン層が形成されることとなり、外観意匠性の極めて良好な成形品を得ることができる。

【 0 0 4 9 】

また、この場合、マスターバッチのマトリックスポリマーを、そのMFRが100～300g/10minのものとする事により、成形時におけるマトリックスポリマーの固相と熔融相との粘度差を小さくして、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損を有効に抑止することができる。加えて、マトリックスポリマーの熔融粘度が低いので、そのガラス長繊維に対する濡れ性をより良好なものとする事ができる。

## 【0050】

## 【発明の実施の形態】

## (実施形態1)

## ＜ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料＞

実施形態1に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料は、マトリックスポリマー、ガラス長繊維、及びマトリックスポリマーとガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分からなる複合体であるペレット状のマスターバッチに、ペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体が希釈ポリマーとして混合されて構成されている。

## 【0051】

マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であり、且つMFRが100～300g/10min（分子量7万～12万5千）であるホモポリプロピレンである。

## 【0052】

ガラス長繊維は、Eガラス等の無アルカリガラスであり、表面はアミノシラン等のカップリング剤で処理されている。

## 【0053】

親和性付与成分は、ガラス長繊維に表面処理されているカップリング剤と化学反応する官能基を有し、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散容易な無水マレイン酸変性ポリプロピレン又はアクリル酸変性ポリプロピレン等の酸変性ポリプロピレンである。ここで、ホモポリプロピレンと酸変性ポリプロピレンとの混合割合は、前者が5～95%であるのに対し、後者が95～5%である。

## 【 0 0 5 4 】

マスターバッチのペレットは、長さ 1 0 ～ 1 2 m m の棒状であり、ガラス長繊維がその長手方向に配向した形態となっている。かかるペレット状のマスターバッチは、ホモポリプロピレンと酸変性ポリプロピレンとを溶融させた浴中にガラス繊維束を浸漬してガラス繊維間にその溶融物を含浸させ、これを固化させた後に長手方向に切断する、いわゆる引き抜き法によって製造することができる。

## 【 0 0 5 5 】

マスターバッチに希釈ポリマーとして混合されたエチレン・プロピレンブロック共重合体は、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上である。そして、この希釈ポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体がマスターバッチに混合されることにより、ガラス長繊維の含有量が全質量に対して質量百分率で 3 0 ～ 5 0 % となるようにされている。

## 【 0 0 5 6 】

上記構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料によれば、マトリックスポリマーの M F R が適度に高い水準にあるので（分子量が低い）、射出成形機のシリンダー内において樹脂材料の溶融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と溶融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑止されることとなって衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマーの溶融粘度が低いので、マトリックスポリマーとガラス長繊維との濡れ性は良好である。また、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンはアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上である、すなわち、メチル基の大部分がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となっているので、分子同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなり、低分子量のマトリックスポリマーにおいても高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

## 【 0 0 5 7 】

また、親和性付与成分として、無水マレイン酸変性ポリプロピレン又はアクリル酸変性ポリプロピレン等の酸変性ポリプロピレンが用いられているので、酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合すると共に、ポリプロピ

レン部分がマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散し、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合が形成されるようになっている。さらに、引き抜き法によるマスターバッチの製造上、マトリックスポリマーのガラス繊維への含浸が十分でない場合、図 1 (a) に示すように、マトリックスポリマー 2 a 中でガラス長繊維 3 a が十分に分散しないペレット 1 a が得られるが、実施形態 1 では上記酸変性ポリプロピレンが用いられていることによって、マトリックスポリマーとガラス繊維との間に高い親和性が付与され、これにマトリックスポリマーの溶融粘度が小さい（分子量が小さい）ことも相俟って、ガラス繊維間にマトリックスポリマーが十分に含浸し、図 1 (b) に示すように、ペレット 1 b のマトリックスポリマー 2 b 中でのガラス長繊維 3 b の分散性が良好なものとなっている。

## 【 0 0 5 8 】

そして、マスターバッチの形態が長さ 1 0 ～ 1 2 mm の棒状のペレットであって、ガラス長繊維がその長手方向に配向しているので、得られる成形品のガラス長繊維含有量にバラツキが生じることが無く、且つ十分な衝撃強度を有効に確保することができる。

## 【 0 0 5 9 】

さらに、マスターバッチにポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が希釈ポリマーとして混合されており、エチレン・プロピレンブロック共重合体は、図 2 に示すように、ポリプロピレン成分 4 中にポリエチレン成分 5 のドメインが形成された海-島構造となっているので、加えられる衝撃がポリプロピレン成分 4 とポリエチレン成分 5 との境界部分でエネルギー吸収されることとなり、得られる成形品の衝撃強度のさらなる向上が図られることとなる。

## 【 0 0 6 0 】

## ＜射出成形機＞

上記ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂は、射出成形機によって射出成形される。

## 【 0 0 6 1 】

この射出成形機では、混練用スクリーに設けられたフライトのピッチ及びフライト溝が従来のものに比べて大きく設定されていることから、フライト部でのガラス長繊維にかかるせん断力が低減されるようになっている。また、逆流防止弁における樹脂材料の流路が従来のものに比べて大きく設定されており、また、押し金にスプラインが設けられていないことから、射出成形機のヘッド部でのガラス長繊維にかかるせん断力が低減されるようになっている。これらによって、射出成形機の改良による樹脂材料のガラス長繊維の折損抑止が図られる。

【 0 0 6 2 】

このような射出成形機を用いた射出成形品の成形は、以下のような手順により行われる。

【 0 0 6 3 】

まず、実施形態 1 に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備する。

【 0 0 6 4 】

次いで、準備した樹脂材料をホッパーから射出成形機に投入する。

【 0 0 6 5 】

次いで、射出成形機に投入した樹脂材料を、射出成形機のシリンダ内で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に混練用スクリーを回転させることにより混練する。

【 0 0 6 6 】

次いで、加熱及び混練した樹脂材料を成形用金型内のキャビティに射出する。

【 0 0 6 7 】

次いで、成形用金型内に射出された樹脂材料を所定時間保圧する。

【 0 0 6 8 】

最後に、成形用金型を型開きして射出成形品を取り出す。

【 0 0 6 9 】

このときの成形条件としては、樹脂温度を  $240 \sim 260^{\circ}\text{C}$ 、金型温度を  $50 \sim 80^{\circ}\text{C}$ 、スクリー回転速度を  $20 \sim 60 \text{ rpm}$ 、背圧を  $0 \sim 9.80 \times 10^5 \text{ Pa}$ （より好ましくは  $2.94 \times 10^5 \sim 3.92 \times 10^5 \text{ Pa}$ ）、射出速度（

射出充填時間)を2.0~7.0秒、射出率を70~90%、射出圧力を1.86~3.24MPa、保圧時の圧力を射出圧力の20~45%、保圧時間を9~20秒間とすることが好適である。

#### 【0070】

##### <射出成形品>

図3は、上記ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を上記射出成型機に投入して成形したシュラウドモジュール6を示す。このシュラウドモジュール6は、シュラウドアッパー、シュラウドサイドメンバー、ヘッドランプ支持部、ラジエータ及びコンデンサー支持部、冷却ファンモータ支持部、ボンネットラッチ支持部等が一体に成形されたものである。

#### 【0071】

このシュラウドモジュール6を形成する樹脂材料は、マスターバッチのマトリックスポリマーがアイソタクチックペンタッド分率95%以上であり、且つMFRが100~300g/10minであるホモポリプロピレンである。また、ガラス長繊維の全体質量に対する質量百分率は30~50%となっている。従って、このシュラウドモジュール6は、ガラス長繊維の折損が有効に抑止され、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた射出成形品となっている。具体的には、含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が4mm以上であり、且つ曲げ弾性率が5GPa以上、アイゾット衝撃値が25KJ/m<sup>2</sup>以上となっている。かかるレベルは、ガラス長繊維の含有率が30~50%である樹脂材料を射出成形して成形されたシュラウドモジュールでは従来達成できなかったものである。

#### 【0072】

また、従来23部品で構成されていたシュラウドモジュールが、射出成形によって一体化したものを得ることができるので、部品点数低減、コスト低減等が図られることとなる。

#### 【0073】

##### (実施形態2)

##### <ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料>

実施形態2に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料は、マトリックス

ポリマー、ガラス長繊維、及びマトリックスポリマーとガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分からなる複合体であるペレット状のマスターバッチに、ペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体が希釈ポリマーとして混合されて構成されている。

## 【 0 0 7 4 】

マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であり、且つMRFが100～300g/10min（分子量7万～12万5千）であるホモポリプロピレンである。

## 【 0 0 7 5 】

ガラス長繊維は、Eガラス等の無アルカリガラスであり、表面はアミノシラン等のカップリング剤で処理されている。

## 【 0 0 7 6 】

親和性付与成分は、ガラス長繊維に表面処理されているカップリング剤と化学反応する官能基を有し、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散容易な無水マレイン酸変性ポリプロピレン又はアクリル酸変性ポリプロピレン等の酸変性ポリプロピレンである。ここで、ホモポリプロピレンと酸変性ポリプロピレンとの混合割合は、前者が5～95%であるのに対し、後者が95～5%である。

## 【 0 0 7 7 】

マスターバッチのペレットは、長さ10～12mmの棒状であり、ガラス長繊維がその長手方向に配向した形態となっている。かかるペレット状のマスターバッチは、ホモポリプロピレンと酸変性ポリプロピレンとを溶融させた浴中にガラス繊維束を浸漬してガラス繊維間にその溶融物を含浸させ、これを固化させた後に長手方向に切断する、いわゆる引き抜き法によって製造することができる。

## 【 0 0 7 8 】

マスターバッチに希釈ポリマーとして混合されたエチレン・プロピレンブロック共重合体は、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上である。そして、この希釈ポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体がマスターバッチに混合されることにより、ガラス長繊維の含有量が全質

量に対して質量百分率で30～50%となるようにされている。

【0079】

上記のように、マスターバッチのマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンのMFRは100～300 g/10 minであるが、これは希釈ポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体のMFRの2倍より大きい。すなわち、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンと希釈ポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体とは粘度差を有し、前者が後者よりも低粘度となっている。

【0080】

この実施形態2に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料もまた、実施形態1と同様の射出成形機を用いて、シュラウドモジュール等の射出成形品を成形するために用いられる。

【0081】

上記構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料によれば、マスターバッチのマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンのMFRが希釈ポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体のMFRの2倍よりも大きいので、両者は大きな粘度差を有し、しかも、前者が後者よりも粘度が低いことから前者の方がガラス長繊維に対する濡れ性がより高く、例えば、射出成形機内で樹脂材料が加熱及び混練された際には、図4に示すように、ガラス長繊維9がホモポリプロピレン10で被覆保護された状態が維持されることとなってその折損が有効に抑止されることとなり、図5に示すように、衝撃強度の高い成形品を得ることができる。しかも、ホモポリプロピレンのMFRが100～300 g/10 minであるので、例えば射出成形機のシリンダー内において樹脂材料の熔融粘度が全体的に低くなり、そのためにホモポリプロピレンの固相と熔融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損もが有効に抑止されることとなり、その作用によっても一層衝撃強度の高い成形品を得ることができる。また、ホモポリプロピレン及びエチレン・プロピレンブロック共重合体のいずれのポリプロピレン成分もアイソタクチックペンタッド分率が95%以上である、すなわち、メチル基の大部分がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となっ



ており、ポリプロピレン分子同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなるのに加え、MFRがホモポリプロピレンのものよりも低いエチレン・プロピレンブロック共重合体が樹脂成分の高強度化に寄与することとなるので、それによって高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

## 【 0 0 8 2 】

さらに、ホモポリプロピレンのMFRがエチレン・プロピレンブロック共重合体のMFRの2倍よりも大きいので、両者が大きな粘度差を有することによってガラス長繊維がホモポリプロピレンにより被覆保護され、その過度の分散が抑止されて成形品表面に露出するものが少なくなり、しかも、図4に示すように、ホモポリプロピレン10がエチレン・プロピレンブロック共重合体11よりも低粘度で流動速度が高いことから、ホモポリプロピレン10が流動路内壁12にホモポリプロピレン層10aを形成しながら流動し、従って、樹脂材料がキャビティ内に充填される際にもキャビティ内壁にホモポリプロピレン層が形成され、その結果、成形品にホモポリプロピレンによる厚肉のスキン層が形成されることとなり、図5に示すように、外観意匠性の極めて良好な成形品を得ることができる。

## 【 0 0 8 3 】

その他の作用・効果は実施形態1と同一である。

## 【 0 0 8 4 】

（その他の実施形態）

上記実施形態1では、マスターバッチにエチレン・プロピレンブロック共重合体を混合してガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂を構成したが、ガラス長繊維の質量百分率を30～50%とするマスターバッチをそのまま樹脂材料として適用してもよい。

## 【 0 0 8 5 】

また、上記実施形態1及び2では、マスターバッチに希釈ポリマーとしてエチレン・プロピレンブロック共重合体を混合してガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂を構成したが、特にこれに限定されるものではなく、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるホモポリプロピレンを希釈ポリマーとして混合するようにしてもよい。

## 【 0 0 8 6 】

また、上記実施形態 1 では、射出成形によりシュラウドモジュール 6 を成形したが、特にこれに限定されるものではなく、ドアインナーパネルであってガラス昇降部材支持部、トリム支持部等が一体成形されたドアモジュール、リフトゲートインナーパネルであってリヤワイパー駆動部材支持部、トリム支持部等が一体成形されたリフトゲートモジュール、レインフォースメントや衝撃吸収部材等が一体成形されたバンパーモジュール、車両のサイドドア下方又はリフトゲート下方に設けられる乗降用のステップ部材、インストルメントパネルクロスメンバーやステアリングブラケット及びエアダクト並びにセンタコンソールメンバ等が一体成形された構造インストルメントパネル部材等を成形しても強度的に適用可能な成形品を得ることができる。

## 【 0 0 8 7 】

## 【実施例 1】

(試験評価サンプル)

以下の各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を試験評価サンプルとして調整した。また、各例の構成について表 1 に示す。

## 【 0 0 8 8 】

ー例 1ー

アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (重量平均分子量  $M_w = 1 0 1 2 0 0$ ) であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 1 0 m m に切断してなるペレット状のマスターバッチを準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン 4 7 %、アクリル酸変性ポリプロピレン 5 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 0 8 9 】

そして、このマスターバッチ 1 0 0 質量部に対し、希釈ポリマーとしてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が 3 0 g / 1 0 m i n であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を 2 0 質

量部混合し、このようにして構成されたガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 とした。なお、希釈によりガラス長繊維の全体質量に対して占める質量百分率は 4 0 % となった。

## 【 0 0 9 0 】

## －例 2－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 0 6 5 0 0) であるものを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 とした。

## 【 0 0 9 1 】

## －例 3－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 1 2 0 0 0) であるものを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 とした。

## 【 0 0 9 2 】

## －例 4－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 2 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 1 9 0 0 0) であるものを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 4 とした。

## 【 0 0 9 3 】

## －例 5－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % で、MFR が 6 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 7 1 0 0 0) であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 1 0 m m に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 5 とした。この樹脂材料は、ホモポリプロピレン 5 0 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 0 % の各質量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 0 9 4 】

## －例 6－

ホモポリプロピレンとしてMFRが80g/10min (Mw=150100)であるものを用いた他は例5と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例6とした。

【0095】

－例7－

ホモポリプロピレンとしてMFRが100g/10min (Mw=120000)であるものを用いた他は例5と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例7とした。

【0096】

－例8－

ホモポリプロピレンとしてMFRが120g/10min (Mw=101200)であるものを用いた他は例5と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例8とした。

【0097】

－例9－

ホモポリプロピレンとしてMFRが150g/10min (Mw=93400)であるものを用いた他は例5と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例9とした。

【0098】

－例10－

ホモポリプロピレンとしてMFRが300g/10min (Mw=70100)であるものを用いた他は例5と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例10とした。

【0099】

－例11－

ホモポリプロピレンとしてMFRが400g/10min (Mw=65100)であるものを用いた他は例5と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例11とした。

【0100】

－例 1 2－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 94.5%で、MFR が 60 g / 10 min (Mw = 184000) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 2 とした。

【0101】

－例 1 3－

ホモポリプロピレンとして MFR が 80 g / 10 min (Mw = 159000) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 3 とした。

【0102】

－例 1 4－

ホモポリプロピレンとして MFR が 100 g / 10 min (Mw = 136000) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 4 とした。

【0103】

－例 1 5－

ホモポリプロピレンとして MFR が 120 g / 10 min (Mw = 126200) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 5 とした。

【0104】

－例 1 6－

ホモポリプロピレンとして MFR が 150 g / 10 min (Mw = 110400) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 6 とした。

【0105】

－例 1 7－

ホモポリプロピレンとして MFR が 300 g / 10 min (Mw = 70100) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 7 とした。

## 【 0 1 0 6 】

## - 例 1 8 -

ホモポリプロピレンとしてMFRが400g/10min (Mw=65100)であるものを用いた他は例12と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例18とした。

## 【 0 1 0 7 】

## - 例 1 9 -

マスターバッチを、ホモポリプロピレン52%及びガラス長繊維48%の各質量百分率で構成したことを除いては例1と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例19とした。すなわち、例19はマスターバッチに酸変性ポリプロピレンポリマーが含まれていないものとした。

## 【 0 1 0 8 】

## - 例 2 0 -

アイソタクチックペンタッド分率が98%で、MFRが120g/10min (重量平均分子量 Mw=101200)であるホモポリプロピレンと、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマーとの熔融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ10mmに切断してなるペレット状のマスターバッチを準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン45%、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー7%及びガラス長繊維48%の各質量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 1 0 9 】

そして、このマスターバッチ100質量部に対し、希釈ポリマーとしてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%で、MFRが30g/10minであるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を20質量部混合し、このようにして構成されたガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例20とした。なお、希釈によりガラス長繊維の全体質量に対して占める質量百分率は40%となった。

## 【 0 1 1 0 】

## - 例 2 1 -

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 4 2 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成したことを除いては例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 1 とした。

【 0 1 1 1 】

－例 2 2－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 3 2 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 2 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成したことを除いては例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 2 とした。

【 0 1 1 2 】

－例 2 3－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 4 7 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 5 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成したことを除いては例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 3 とした。

【 0 1 1 3 】

－例 2 4－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 4 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成したことを除いては例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 4 とした。

【 0 1 1 4 】

－例 2 5－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 3 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 2 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成したことを除いては例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 5 とした。

【 0 1 1 5 】

## - 例 2 6 -

希釈ポリマーとしてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 6 % であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 6 とした。

【 0 1 1 6 】

## - 例 2 7 -

希釈ポリマーとしてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 2 % であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 7 とした。

【 0 1 1 7 】

## - 例 2 8 -

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が  $120 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 106500$ ) であるホモポリプロピレンと、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ  $10 \text{ mm}$  に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 2 8 とした。この樹脂材料は、ホモポリプロピレン 4 5 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 7 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成されているものであった。

【 0 1 1 8 】

## - 例 2 9 -

ホモポリプロピレン 4 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成したことを除いては例 2 8 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 9 とした。

【 0 1 1 9 】

## - 例 3 0 -

ホモポリプロピレンとして MFR が  $100 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 123000$ ) であるものを用いた他は例 2 8 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 0 とした。

【 0 1 2 0 】



## - 例 3 1 -

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が  $60 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 182000$ ) であるホモポリプロピレンと、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ  $10 \text{ mm}$  に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 3 1 とした。この樹脂材料は、ホモポリプロピレン 3 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 2 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各質量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 1 2 1 】

## - 例 3 2 -

ホモポリプロピレンとして MFR が  $150 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 95000$ ) であるものを用いた他は例 3 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 2 とした。

## 【 0 1 2 2 】

## - 例 3 3 -

希釈ポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 6 % であるペレット状のホモポリプロピレンを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 3 とした。

## 【 0 1 2 3 】

## - 例 3 4 -

希釈ポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 6 % であるペレット状のホモポリプロピレンを用いた他は例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 4 とした。

## 【 0 1 2 4 】

## - 例 3 5 -

ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % で、MFR が  $60 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 178000$ ) であるエチレン・プロピレンブロック共重合体と、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ  $10 \text{ mm}$  に切断して

なるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 3 5 とした。この樹脂材料は、エチレン・プロピレンブロック共重合体 5 0 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 0 % の各質量百分率で構成されているものであった。

【 0 1 2 5 】

－例 3 6－

エチレン・プロピレンブロック共重合体として MFR が  $80\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 153000$ ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 6 とした。

【 0 1 2 6 】

－例 3 7－

エチレン・プロピレンブロック共重合体として MFR が  $100\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 120100$ ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 7 とした。

【 0 1 2 7 】

－例 3 8－

エチレン・プロピレンブロック共重合体として MFR が  $120\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 111800$ ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 8 とした。

【 0 1 2 8 】

－例 3 9－

エチレン・プロピレンブロック共重合体として MFR が  $150\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 103200$ ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 9 とした。

【 0 1 2 9 】

－例 4 0－

エチレン・プロピレンブロック共重合体として MFR が  $300\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 70000$ ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 4 0 とした。

## 【 0 1 3 0 】

## － 例 4 1 －

エチレン・プロピレンブロック共重合体としてMFRが400g/10min (Mw=65100)であるものを用いた他は例35と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例41とした。

## 【 0 1 3 1 】

## － 例 4 2 －

イソタクチックペンタッド分率が98%で、MFRが120g/10min (重量平均分子量 Mw=107000)であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ10mmに切断してなるペレット状のマスターバッチを準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン50.1%、無水マレイン酸変性ポリプロピレン1.9%及びガラス長繊維48%の各質量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 1 3 2 】

そして、このマスターバッチ100質量部に対し、希釈ポリマーとしてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が96%で、MFRが30g/10minであるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を20質量部混合し、このようにして構成されたガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例42とした。なお、希釈によりガラス長繊維の全体質量に対して占める質量百分率は48%となった。

## 【 0 1 3 3 】

【表 1】

	ポリプロピレンホモポリマー				調和性付与成分		ガラス長繊維	希釈ポリマー		
	アイソタクチック ヘンダクト分率%	MFR g/10min	重量平均分子量	ポリプロピレン 配合量 %	ポリプロピレン 配合量 %	配合量 %		希釈ポリマー種	アイソタクチック ヘンダクト分率%	マスターバッチ100質量部 に対する配合量
例1	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例2	95	120	106500	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例3	94.5	120	112000	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例4	92	120	119000	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例5	98	80	171000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例6	98	80	150100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例7	98	100	120000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例8	98	120	101200	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例9	98	150	93400	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例10	98	300	70100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例11	98	400	65100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例12	94.5	80	184000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例13	94.5	80	159000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例14	94.5	100	136000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例15	94.5	120	126200	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例16	94.5	150	110400	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例17	94.5	300	70100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例18	94.5	400	65100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例19	98	120	101200	52	／	／	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例20	98	120	101200	45	無水マレイン酸	7	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例21	98	120	101200	42	アクリル酸	10	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例22	98	120	101200	32	アクリル酸	20	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例23	98	120	101200	47	無水マレイン酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例24	98	120	101200	42	無水マレイン酸	10	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例25	98	120	101200	32	無水マレイン酸	20	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例26	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	96	20
例27	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	92	20
例28	95	120	106500	45	無水マレイン酸	7	48	／	／	／
例29	95	120	106500	42	無水マレイン酸	10	48	／	／	／
例30	95	100	125000	45	無水マレイン酸	7	48	／	／	／
例31	95	80	182000	32	無水マレイン酸	20	48	／	／	／
例32	95	150	85000	32	無水マレイン酸	20	48	／	／	／
例33	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	ポリプロピレンホモポリマー	98	20
例34	98	100	112000	47	無水マレイン酸	7	48	ポリプロピレンホモポリマー	98	20
例35	94.5	80	178000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例36	94.5	80	153000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例37	94.5	100	120100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例38	94.5	120	111800	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例39	94.5	150	103200	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例40	94.5	300	70000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例41	94.5	400	65100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例42	98	120	107000	50.1	無水マレイン酸	1.9	48	エチレン・プロピレン共重合体	98	20

【0 1 3 4】

(試験評価方法)

&lt;重量平均繊維長&gt;

調整した各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料により板状の試験片を射出成形した。次いで、成形した試験片から約1000本のガラス長繊維

を抽出すると共に、それぞれの長さを計測した。そして、次式に従って重量平均繊維長を各サンプル毎に算出した。

【0 1 3 5】

【式 3】

$$\text{重量平均繊維長} = \frac{\sum (\text{繊維長})^2}{\sum \text{繊維長}}$$

【0 1 3 6】

<曲げ弾性率>

調整した各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料により板状の試験片を射出成形した。次いで、この試験片を用い、J I S K 7 1 7 1 (A S T M D 7 9 0) に準じて曲げ試験を実施した。

【0 1 3 7】

そして、得られた試験チャートから曲げ弾性率を求めた。

【0 1 3 8】

<アイゾット衝撃値>

調整した各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料により一辺が 12.7 mm の正方形断面で、長さが 64.0 mm の棒状体を射出成形した。そして、J I S K 7 1 1 0 (A S T M D 2 5 6) のアイゾット衝撃試験方法に示されているように、各棒状体に切り欠き部を設けて 2 号 A 試験片を作成した。このとき、各試験片の切り欠き部の幅等を計測した。次いで、この試験片を用い、同規格に準じてアイゾット衝撃試験を実施した。

【0 1 3 9】

そして、ハンマの回転軸周りのモーメント (W R) と、ハンマの持ち上げ角度 ( $\alpha$ ) と、試験片破壊後のハンマの振り上がり角度 ( $\beta$ ) と、衝撃試験時のエネルギー損失 (L) とから、次式に基づき試験片を破壊するのに要した吸収エネルギー (E) を算出した。

【0 1 4 0】

【式 4】

$$E = WR (\cos \alpha - \cos \beta) - L$$

【 0 1 4 1 】

さらに、この吸収エネルギー（E）と、試験片の切り欠き部の幅（b）と、試験片の切り欠き部付近の厚さ（t）と、試験片の切り欠き深さ（d）とから、次式に基づきアイゾット衝撃値（ $a_{KI}$ ）を算出した。

【 0 1 4 2 】

【式 5】

$$a_{KI} = \frac{E}{b(t-d)} \times 1000$$

【 0 1 4 3 】

（試験評価結果）

試験結果は表 2 に示す。

【 0 1 4 4 】

【表 2】

	重量平均繊維長 mm	曲げ弾性率 GPa	アイゾット衝撃値 KJ/m <sup>2</sup>
例1	4.5	5.6	32
例2	4.4	5.3	30
例3	4.1	4.9	31
例4	3.8	4.2	30
例5	2.9	7.1	18
例6	3.7	6.2	21
例7	4.1	5.7	25
例8	4.3	5.8	28
例9	5.7	5.7	30
例10	6.1	5.6	34
例11	6	4.9	28
例12	1.4	5.7	11
例13	2.4	5.1	17
例14	2.8	5.1	19
例15	3.1	5	20
例16	3.5	4.9	25
例17	4.3	4.8	33
例18	4.4	4.8	29
例19	4.3	3.9	15
例20	4.2	5.1	26
例21	4.6	5.3	28
例22	4.5	5.1	27
例23	4.5	5	25
例24	4.6	5.4	28
例25	4.5	5.1	29
例26	4.7	5.7	30
例27	3.8	4.7	26
例28	4.3	7.5	30
例29	4.5	7.2	28
例30	4	7.6	27
例31	2.5	4.9	18
例32	4	5.7	26
例33	4.7	5.8	30
例34	4.5	5.4	28
例35	2	5.5	20
例36	2.3	5.4	23
例37	2.7	5	24
例38	3.3	4.8	28
例39	4	4.5	32
例40	4.4	4.5	37
例41	4.6	4.8	32
例42	4.56	5.6	38

【0 1 4 5】

＜マトリックスポリマーであるポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド

分率の影響について＞

図6は、ホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を例1～4についての試験結果に基づいて示したものである。

【0146】

同図によれば、ホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率が高くなるに従って、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のいずれもが向上していることが分かる。

【0147】

ここで、重量平均繊維長が長くなる理由については明らかではない。但し、例1～4については、MFRが120g/10minであるホモポリプロピレンを有するマスターバッチに希釈ポリマーとしてMFRが30g/10minのエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されており、前者のMFRが後者のものの4倍であるので、両者は大きな粘度差を有し、しかも、前者が後者よりも粘度が低いことから前者の方がガラス長繊維に対する濡れ性がより高く、射出成形機内で樹脂材料が加熱及び混練された際には、ガラス長繊維が低粘度のホモポリプロピレンで被覆保護された状態が維持されることとなってその折損が有効に抑止されるといった効果が見込まれる。

【0148】

曲げ弾性率が向上しているのは、アイソタクチックペンタッド分率が高くなるに従って、ポリプロピレンにおけるメチル基がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となる割合が高くなり、そのためにポリプロピレン分子同士ができるだけ密に配列して、より結晶化度が高い状態で固化するためであると考えられる。

【0149】

アイゾット衝撃値が向上しているのは、重量平均繊維長が長くなっていることに起因するものであると共にポリプロピレン成分の結晶化度が高くなるためであると考えられる。

【0150】

これらの例の比較によれば、アイソタクチックペンタッド分率が95%である



例 3 及び 9 8 % である例 1 において、重量平均繊維長が 4 m m 以上、曲げ弾性率が 5 G P a 以上及びアイゾット衝撃値が 3 0 K J / m<sup>2</sup> 以上の射出成形品が得られることとなる。

#### 【 0 1 5 1 】

＜マトリックスポリマーの M F R の影響について＞

図 7 は、マトリックスポリマーの M F R と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を例 5 ～ 1 8 及び例 3 5 ～ 4 1 についての試験結果に基づいて示したものである。また、例 2 8 と例 3 0、及び例 3 1 と例 3 2 の試験結果についても図 7 に併せて示している。

#### 【 0 1 5 2 】

同図によれば、アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例 5 ～ 1 1、アイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例 1 2 ～ 1 8 及びアイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % であるエチレン・プロピレンブロック共重合体をマトリックスポリマーとした例 3 5 ～ 4 1 のいずれも、M F R が大きくなるのに伴う（分子量が小さくなるのに伴う）重量平均分子量、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値の挙動は同一である。

#### 【 0 1 5 3 】

すなわち、重量平均繊維長は、M F R が 1 5 0 g / 1 0 m i n となるまではその増大に伴って長くなっている。これは、マトリックスポリマーの分子量が小さくなることに伴いその溶融粘度が低下し、それによって射出成形過程におけるガラス繊維の折損が有効に抑止されるようになったためであると考えられる。また、重量平均繊維長は、M F R が 1 5 0 g / 1 0 m i n を越えると若干の向上傾向は伺われるものの、その向上度は小さいものとなっている。

#### 【 0 1 5 4 】

曲げ弾性率は、M F R が 1 5 0 g / 1 0 m i n となるまではその増大に伴って低下している。これは、マトリックスポリマーの分子量が小さくなることに起因したものであると考えられる。また、曲げ弾性率は、M F R が 1 5 0 g / 1 0 m i n を越えるとほぼ同水準を推移する傾向が伺われる。

## 【 0 1 5 5 】

アイゾット衝撃値は、MFRが300 g / 10 minとなるまではその増大に伴って向上している。これは、上記と同様にガラス長繊維の折損が有効に抑止されるようになったためであると考えられる。また、アイゾット衝撃値は、MFRが300 g / 10 minを越えると低下している。これは、マトリックスポリマーの熔融粘度が低くなりすぎて、エアの巻き込みにより成形品にボイドが生じたためであると考えられる。

## 【 0 1 5 6 】

これらの例の比較によれば、アイソタクチックペンタッド分率が98%であり、MFRが100～300 g / 10 minであるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとする例7～10において、重量平均繊維長が4 mm以上、曲げ弾性率が5 GPa以上及びアイゾット衝撃値が25 KJ / m<sup>2</sup>以上の射出成形品が得られることとなる。

## 【 0 1 5 7 】

例28と例30とはマトリックスポリマーであるポリプロピレンのMFRのみを異にするものである。図7に示すように、各特性が上記と同様の挙動を示している傾向が伺われる。曲げ弾性率が他の例よりも高い水準にある点が特徴となっている。

## 【 0 1 5 8 】

例31と例32とはマトリックスポリマーであるポリプロピレンのMFRのみを異にするものである。図7 (b) に示すように、MFRが60 g / 10 minである例31よりもMFRが150 g / 10 minである例32の方が曲げ弾性率が高く、上記とは逆の傾向が見られる。しかしながら、図7 (a) 及び (c) に示すように、重量平均繊維長及びアイゾット衝撃値の結果を見る限りにおいては、例31及び例32が特異な挙動を示すものではないと考えられる。

## 【 0 1 5 9 】

また、アイソタクチックペンタッド分率が98%であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例5～11と、アイソタクチックペンタッド分率が94.5%であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例12～1

8とを比較すると、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のいずれにおいても前者の方が高い水準にあることが確認できる。この理由については、ホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率を変量した場合と同様であると考えられる。

#### 【0160】

なお、マトリックスポリマーをホモポリプロピレンとした例11～18と、エチレン・プロピレン共重合体とした例35～41との比較については後述する。

#### 【0161】

＜親和性付与成分である酸変性ポリプロピレンの影響について＞

図8は、例19と例1と例20との試験結果に基づいて、それらの重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値を比較したものである。ここで、例19はマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンとガラス長繊維との親和性付与成分を含まない構成であり、例1はアクリル酸変性ポリプロピレンを、例20は無水マレイン酸変性ポリプロピレンをそれぞれ親和性付与成分として含む構成である。

#### 【0162】

同図によれば、親和性付与成分を含まない例19は、親和性付与成分を含む例1及び例20と同等の重量平均繊維長を示しているもの、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値は極めて低い水準を示している。これは、例1及び例20では、親和性付与成分の酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合すると共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散して、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合を形成するのに対し、例19ではかかる結合が形成されず、曲げ変形や衝撃が加えられた際にマトリックスポリマーとガラス長繊維表面との界面で剥離が生じるためであると考えられる。

#### 【0163】

これらの例の比較によれば、親和性付与成分を含む例1及び例20において、重量平均繊維長が4 mm以上、曲げ弾性率が5 GPa以上及びアイゾット衝撃値が25 KJ/m<sup>2</sup>以上の射出成形品が得られることとなる。

## 【 0 1 6 4 】

＜親和性付与成分である酸変性ポリプロピレンの含有量の影響について＞

図 9 は、アクリル酸変性ポリプロピレンのマスターバッチにおける含有量と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との関係为例 1、例 1 9、例 2 1 及び例 2 2 の試験結果に基づいて示したものである。また、図 1 0 は、無水マレイン酸変性ポリプロピレンのマスターバッチにおける含有量と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との関係为例 1 9、例 2 0 及び例 2 3 ～ 2 5 の試験結果に基づいて示したものである。また、図 1 0 には、例 2 8 及び例 2 9 の試験結果をも示している。

## 【 0 1 6 5 】

図 9 ( a ) 及び図 1 0 ( a ) によれば、重量平均繊維長は、酸変性ポリプロピレンの含有量によらず、ほぼ 4 m m 強の水準で推移している。

## 【 0 1 6 6 】

図 9 ( b ) 及び ( c ) によれば、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値は、アクリル酸変性ポリプロピレンの含有量が 5 % まではその増大に伴う向上効果が確認できるものの、 5 % 以上含有させるようにしてもそれらのさらなる向上効果はみられない。これと同様、図 1 0 ( b ) 及び ( c ) に示すように、無水マレイン酸変性ポリプロピレンの場合、それを 1 0 % 以上含有させるようにしても曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のさらなる向上効果はみられない。

## 【 0 1 6 7 】

例 2 8 と例 2 9 とは共にアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとし、親和性付与成分としての無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量のみを異にするものであるが、図 1 0 に示すように、上記と同様の傾向が伺われる。すなわち、重量平均繊維長及びアイゾット衝撃値については、同じ無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量を有する例 2 0 及び例 2 4 とほぼ同じ水準であり、曲げ弾性率については、例 2 0 及び例 2 4 よりは高い水準であるが、無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量の多少によらずほぼ同水準を示している。

## 【 0 1 6 8 】

＜エチレン・プロピレンブロック共重合体をマトリックスポリマーとする、又はエチレン・プロピレンブロック共重合体を希釈ポリマーとすることによる影響について＞

図 7 において、マトリックスポリマーを、アイソタクチックペンタッド分率が 94.5% であるホモポリプロピレンとする例 12～18 と、アイソタクチックペンタッド分率が 94.5% であるポリプロピレン成分を有するエチレン・プロピレンブロック共重合体とする例 35～41 とを比較すると、各対応する MFR に対して重量平均繊維長及び曲げ弾性率は共に近い値を示しているのに対し、アイゾット衝撃値は後者の方が  $3 \sim 9 \text{ KJ/m}^2$  高くなっており、その水準はアイソタクチックペンタッド分率が 98% であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとする例 5～11 と同等又はそれ以上である。これは、後者では、マトリックスポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体が、ポリプロピレン成分中にポリエチレン成分のドメインが形成された海-島構造となっているため、加えられる衝撃がポリプロピレン成分とポリエチレン成分の境界部分でエネルギー吸収されるためであると考えられる。

#### 【0169】

次に、ホモポリプロピレンをマスターバッチのマトリックスポリマーとし、エチレン・プロピレン共重合体を希釈ポリマーとして使用した場合について考察する。

#### 【0170】

図 11 は、例 1 と例 33 及び例 20 と例 34 の試験結果に基づいて、それらの重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値を比較したものである。ここで、例 1 と例 33 とはマスターバッチに混合される希釈ポリマー種がそれぞれ異なり、例 1 はエチレン・プロピレン共重合体を使用され、例 33 はホモポリプロピレンが使用されたものである。例 20 及び例 34 の構成の相異も同様である。

#### 【0171】

図 11 によれば、重量平均繊維長及び曲げ弾性率は、エチレン・プロピレン共重合体を希釈ポリマーとした例 1 の方が、ホモポリプロピレンを希釈ポリマーとした例 33 よりも若干高い値を示している。この点は例 20 と例 34 との比較に

においても同じである。アイゾット衝撃値は、例 1 の方が例 3 3 よりも若干高くなっているものの、例 2 0 は逆に例 3 4 よりも低くなっており、図 7 に示されるようなエチレン・プロピレン共重合体の耐衝撃性向上効果は確認できない。この点は、希釈ポリマーにおけるポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率の相異に起因するものではないかと推測される。

## 【 0 1 7 2 】

＜希釈ポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体におけるポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率の影響について＞

図 1 2 は、希釈ポリマーであるエチレン・プロピレン共重合体のポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を例 1、例 2 6 及び例 2 7 についての試験結果に基づいて示したものである。

## 【 0 1 7 3 】

同図によれば、希釈ポリマーであるエチレン・プロピレン共重合体のポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が高くなるに従って、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のいずれもが向上する傾向が伺われる。すなわち、ポリプロピレン成分を含む希釈ポリマーでマスターバッチを希釈する場合においても、そのアイソタクチックペンタッド分率が成形品の特性に大きな影響を及ぼすということが確認された。

## 【 0 1 7 4 】

ここで、各特性がアイソタクチックペンタッド分率が大きくなるに従って向上傾向を示す理由については、ホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率を変量した場合と同様であると考えられる。

## 【 0 1 7 5 】

これらの例の比較によれば、アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % である例 1 及び 9 6 % である例 2 6 において、重量平均繊維長が 4 m m 以上、曲げ弾性率が 5 G P a 以上及びアイゾット衝撃値が 3 0 K J / m<sup>2</sup> 以上の射出成形品が得られることとなる。

## 【 0 1 7 6 】

### ＜例 4 2 について＞

例 4 2 は、例 1 9 を除く他の例に比べて親和性付与成分である酸変性ポリプロピレンの含有量が少なく、質量百分率で 2. 0 % 以下である。しかしながら、例 4 2 は、重量平均繊維長が 4. 5 6 m m、曲げ弾性率が 5. 6 G P a 及びアイゾット衝撃値が 3 8 K J / m<sup>2</sup>で、いずれも極めて高い水準を示している。これは、例 4 2 では、親和性付与成分である無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量が少なく、マトリックスポリマー及び希釈材ポリマーが占める割合が多いために、樹脂本体の強度が高められたためであると考えられる。

### 【 0 1 7 7 】

また、図 9 及び 1 0 は、酸変性ポリプロピレンの含有量が所定量まではその増大に伴って曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値が向上するものの、その含有量が所定量以上となるとそれらのさらなる向上がみられないことを示している。例 4 2 の試験結果から判断すれば、例 4 2 の構成ではその所定量が全体質量に対して 2. 0 % 程度と考えられ、その程度の酸変性ポリプロピレンを含有させれば、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの親和性が十分に確保できるものと推測される。

### 【 0 1 7 8 】

#### 【実施例 2】

ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料に含有されるガラス長繊維の質量百分率と、その射出成形品の曲げ特性及びアイゾット衝撃値との関係について調べた。

### 【 0 1 7 9 】

#### （試験評価サンプル）

アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % で、M F R が 1 2 0 g / 1 0 m i n（重量平均分子量  $M_w = 1 0 1 2 0 0$ ）であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 1 0 m m に切断してなるペレット状のマスターバッチを準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン 2 5 %、アクリル酸変性ポリプロピレン 5 % 及びガラス長繊維 7 0 % の各質量百分率で構成されているも

のであった。

【0180】

そして、このマスターバッチを、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が96%であるペレット状のホモポリプロピレンで適宜希釈し、ガラス長繊維の全体質量に対する質量百分率が10、20、30、40及び50%となるガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料をそれぞれ調整した。また、比較材料として、マスターバッチを構成するホモポリプロピレンのみからなるペレットをも準備した。

【0181】

(試験評価方法)

調整した各樹脂材料及び比較材料のそれぞれについて板状の試験片を射出成形した。次いで、これら試験片を用い、JIS K7171 (ASTM D790) に準じて曲げ試験を実施した。そして、得られた試験チャートから曲げ弾性率及び曲げ強度を求めた。

【0182】

また、上記実施例1と同様にして、各樹脂材料及び比較材料のそれぞれのアイゾット衝撃値をJIS K7110 (ASTM D256) に準じて測定した。

【0183】

(試験評価結果)

<曲げ弾性率について>

ガラス長繊維の質量百分率と曲げ弾性率との関係を図13 (a) に示す。図13 (a) より明らかなように、ガラス長繊維含有量が多くなると、それに比例するように曲げ弾性率も高くなっている。これは、ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂成形品の曲げ弾性率がガラス長繊維の含有量に依存するというものを裏付ける結果となっている。具体的には、ガラス長繊維の含有量が30%以上で5 GPa以上の曲げ弾性率が発現されている。

【0184】

<曲げ強度について>

ガラス長繊維の質量百分率と曲げ強度との関係を図13 (b) に示す。図13



(b) より明らかなように、ガラス長繊維含有量が大きくなるに従って曲げ強度も高くなっている。これは、曲げ弾性率の結果に準ずるものであると考えられる。

#### 【0185】

##### <アイゾット衝撃値について>

ガラス長繊維の質量百分率とアイゾット衝撃値との関係を図13(c)に示す。図13(c)より明らかなように、ガラス長繊維含有量が多くなるに従ってアイゾット衝撃値も高くなっている。注目されるのは、ガラス長繊維の質量百分率が30%及び40%においてアイゾット衝撃値が $25\text{ KJ/m}^2$ 以上の水準となっている点にあり、これは同等のガラス繊維の質量百分率を有する従来の射出成形品では実現することができなかった水準である。

#### 【0186】

尚、上記実施例1及び2のデータは、実成形品から切り出した棒状体に後加工により切り欠き部を設けた試験片を使用した試験でアイゾット衝撃値を求め、また、実成形品から切り出した試験片で曲げ弾性率を計測したものである。従って、実成形品から切り出したものでない成形品(試験片)そのものでは、ガラス長繊維の配向により、さらに高いアイゾット衝撃値及び曲げ弾性率が期待できる。

#### 【0187】

##### 【実施例3】

ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料及びガラス長繊維強化ポリアミド樹脂材料の曲げ疲労特性を比較する試験評価を行った。

#### 【0188】

##### (試験評価サンプル)

アイソタクチックペンタッド分率が95%で、MFRが $120\text{ g/10 min}$ (重量平均分子量  $M_w = 101200$ )であるホモポリプロピレン47%、アクリル酸変性ポリプロピレン5%及びガラス長繊維48%の各質量百分率で構成された平均長さ10mmのペレット状のマスターバッチに、希釈ポリマーとしてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%で、MFRが $30\text{ g/10 min}$ であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を

マスターバッチ 1 0 0 質量部に対して 2 0 質量部混合し、ガラス長繊維の全体質量に対して占める質量百分率を 4 0 % としたガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料、すなわち、実施例 1 で使用した例 2 に係る樹脂材料を準備した。

## 【 0 1 8 9 】

また、ガラス長繊維を 3 0 質量% 含有する上記樹脂材料のマスターバッチと同形態のペレット状のガラス長繊維強化ポリアミド樹脂材料を準備した。

## 【 0 1 9 0 】

## (試験評価方法)

準備した各樹脂材料を射出成形機に投入し、板状試験片とダンベル状試験片とを数枚ずつ射出成形した。このとき、例 2 に係るポリプロピレン製の樹脂材料の板状試験片の射出成形条件は、スクリュウ回転速度を 4 5 r p m、背圧を  $2.94 \times 10^5 \sim 3.92 \times 10^5$  P a、射出率を 7 0 ~ 9 0 %、射出圧力を 2. 0 6 ~ 2. 1 6 M P a、保圧時の圧力を射出圧力の 2 5 ~ 2 0 %、射出速度（射出充填時間）を 5. 0 秒、保圧時間を 1 0 秒間及び冷却時間を 5 0 秒間とした（表 3 参照）。また、射出成形機のホッパーを 5 5 °C 及び成形用金型を 5 0 ~ 5 5 °C にそれぞれ温度設定すると共に、ホッパー側から成形用金型側に向かってシリンダを 6 分割し、それぞれ順に 1 9 0 °C、2 2 0 °C、2 3 0 ~ 2 4 0 °C、2 4 0 ~ 2 5 0 °C、2 4 0 °C ~ 2 5 0 °C 及び 2 2 0 °C に温度設定した（表 4 参照）。例 2 に係るポリプロピレン製の樹脂材料のダンベル状試験片の射出成形条件は、スクリュウ回転速度を 4 5 r p m、背圧を  $2.94 \times 10^5 \sim 3.92 \times 10^5$  P a、射出率を 7 0 ~ 9 0 %、射出圧力を 2. 8 4 ~ 3. 2 4 M P a、保圧時の圧力を射出圧力の 4 5 ~ 4 0 %、射出速度（射出充填時間）を 2. 4 秒、保圧時間を 9. 6 秒間及び冷却時間を 5 0 秒間とした（表 3 参照）。また、射出成形機のホッパー等の温度設定は板状試験片の場合と同一とした（表 4 参照）。なお、板状及びダンベル状のいずれの試験片も重量平均繊維長が 4 m m 以上であった。

## 【 0 1 9 1 】

また、ポリアミド製の樹脂材料の板状試験片の射出成形条件は、射出圧力を 1. 8 6 ~ 1. 9 6 M P a としたことを除いては例 2 の板状試験片の成形条件と同一とした（表 3 及び 4 参照）。ポリアミド製の樹脂材料のダンベル状試験片の射

出成形条件は、射出圧力を 2. 5 5 ~ 2. 8 4 M P a、射出速度（射出充填時間）を 2. 3 秒及び保圧時間を 9. 7 秒間としたことを除いては例 2 のダンベル状試験片の成形条件と同一とした（表 3 及び 4 参照）。なお、板状及びダンベル状のいずれの試験片も重量平均繊維長が 1 m m 以下であった。

【 0 1 9 2 】

【表 3】

	試験片タイプ	スクリー 回転速度 (rpm)	背圧 (Pa)	射出充填時間 (秒)	射出率 (%)	射出圧力 (MPa)	射出圧力に対する 保圧圧力の百分率 (%)	保圧時間 (秒)	冷却時間 (秒)
ポリプロピレン製	板状	45	2.94~3.92	5	70~90	2.06~2.16	25~20	10	50
	ダンベル状	45	2.94~3.92	2.4	70~90	2.84~3.24	45~40	9.5	50
ポリアミド製	板状	45	2.94~3.92	5	70~90	1.86~1.96	25~20	10	50
	ダンベル状	45	2.94~3.92	2.3	70~90	2.55~2.84	45~40	9.7	50

【 0 1 9 3 】

【表 4】

ホッパー温度	シリンダー温度						金型温度
	第1ゾーン	第2ゾーン	第3ゾーン	第4ゾーン	第5ゾーン	第6ゾーン	
50~55	190	220	230~240	240~250	240~250	220	50~55

【0194】

ポリプロピレン製及びポリアミド製のそれぞれの樹脂材料を射出成形したダンベル状試験片を用い、ASTM D671 (JIS K7118及び7119) に準じて定応力曲げ疲労試験を実施した。曲げ疲労試験は、100℃及び120℃のそれぞれの温度条件の下で行った。また、応力は、各樹脂材料の各試験温度毎に20~50MPaの範囲で4水準設定した。

【0195】

そして、設定応力に対応する各試験片の破壊までの曲げ回数を樹脂材料毎に記録した。

【0196】

(試験評価結果)

100℃及び120℃の条件下での試験結果を図15、16にそれぞれ示す。これらの図によれば、例2に係るポリプロピレン製の樹脂材料を用いた射出成形品は、温度条件100℃ではポリアミド製の樹脂材料を用いたものと同等の耐曲げ疲労特性を有し、温度条件120℃ではポリアミド製の樹脂材料を用いたものを上回る耐曲げ疲労特性を有することが分かる。これは、例2に係るポリプロピレン製の樹脂材料の射出成形品では含有されるガラス長繊維の重量平均繊維長が4mm以上あるために(表2参照)、試験温度が高くなってもその補強効果が維持されることから耐曲げ疲労特性の低下が小さいのに対し、ポリアミド製樹脂材料を用いたものでは含有されるガラス長繊維の重量平均繊維長が1mm以下であるために、試験温度が高くなるとガラス長繊維による補強効果の低下が著しいものとなり、それに伴って耐曲げ疲労特性の低下も大きくなったものと考えられる。

【0197】

自動車のシュラウドモジュールが設けられる部位は100℃近傍まで温度が上がるため、それを構成する樹脂材料として、塩害、腐食性の問題があり、また、

吸水により形状が変わるために精度が悪いという欠点があるものの、射出成形品の高温下での耐疲労性がガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を用いたものよりも優れるということからガラス長繊維強化ポリアミド樹脂材料が従来から使用されてきた。しかしながら、本願発明に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料は、それを用いた射出成形品に含有されるガラス長繊維の重量平均繊維長が4 mm以上となり、そのために高温下での耐疲労性がガラス長繊維強化ポリアミド樹脂材料を用いたものよりも優れ、また、塩害等のデメリットが無いことから、自動車のシュラウドモジュールを構成する樹脂材料としての適用が可能である。

【図面の簡単な説明】

【図1】

ペレットのマトリックスポリマー中でのガラス長繊維の分散状態を示す説明図である。

【図2】

エチレン・プロピレンブロック共重合体の構造を示す説明図である。

【図3】

射出成形されたシュラウドモジュールの斜視図である。

【図4】

実施形態2における樹脂材料の流動状態を示す説明図である。

【図5】

マトリックスポリマーのMFRの希釈ポリマーのMFRに対する比と、射出成形品の衝撃強度及び外観意匠性との関係を示すグラフ図である。

【図6】

実施例1の試験評価結果に基づいた、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図7】

実施例1の試験評価結果に基づいた、マトリックスポリマーのMFRと、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグ

ラフ図である。

【図 8】

実施例 1 の試験評価結果に基づいた、親和性付与成分の有無による射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値の各特性を比較したグラフ図である。

【図 9】

実施例 1 の試験評価結果に基づいた、アクリル酸変性ポリプロピレンの含有量と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 1 0】

実施例 1 の試験評価結果に基づいた、無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 1 1】

実施例 1 の試験評価結果に基づいた、マスターバッチに混合する希釈ポリマーをホモポリプロピレンとしたものと、エチレン・プロピレンブロック共重合体としたものについて射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値の各特性を比較したグラフ図である。

【図 1 2】

実施例 1 の試験評価結果に基づいた、希釈ポリマーであるエチレン・プロピレン共重合体のポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 1 3】

実施例 2 の試験評価結果に基づいた、ガラス長繊維の質量百分率と、射出成形品の曲げ特性及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 1 4】

実施例 3 の試験評価結果に基づいた、100℃での曲げ疲労試験の結果を示すグラフ図である。

【図 1 5】

実施例 3 の試験評価結果に基づいた、120℃での曲げ疲労試験の結果を示すグラフ図である。

【図 1 6】

従来の射出成形品及びプレス成形品のアイゾット衝撃値と曲げ弾性率との関係を示すグラフ図である。

【図 1 7】

射出成形機内におけるマトリックスポリマー及びガラス長繊維の状態を示す説明図である。

【図 1 8】

ガラス長繊維の分散性改良及びエラストマー添加による衝撃強度向上を図ったガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂のアイゾット衝撃値と曲げ弾性率との関係を示すグラフ図である。

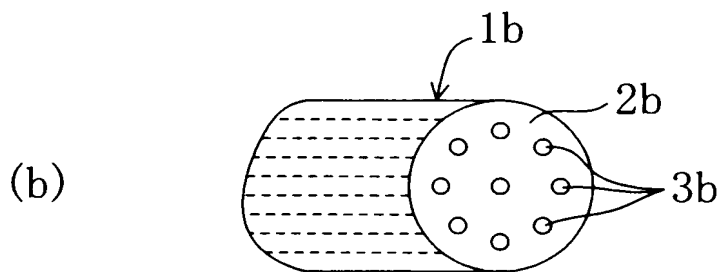
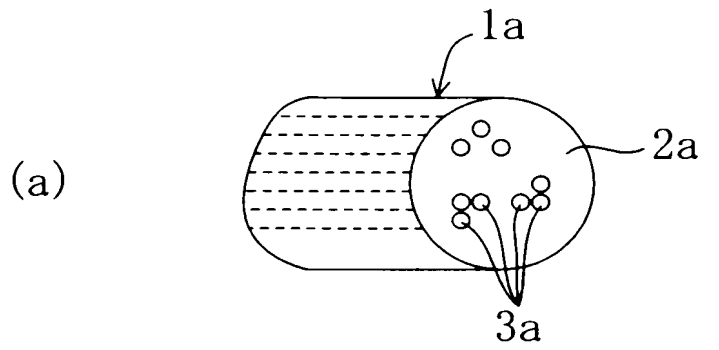
【符号の説明】

- 1 a, 1 b   ペレット
- 2 a, 2 b   マトリックスポリマー
- 3 a, 3 b, 9   ガラス長繊維
- 4   ポリプロピレン成分
- 5   ポリエチレン成分
- 6   シュラウドモジュール
- 7   固相
- 8   熔融相
- 1 0   ホモポリプロピレン
- 1 0 a   ホモポリプロピレン層
- 1 1   エチレン・プロピレンブロック共重合体
- 1 2   流動路内壁

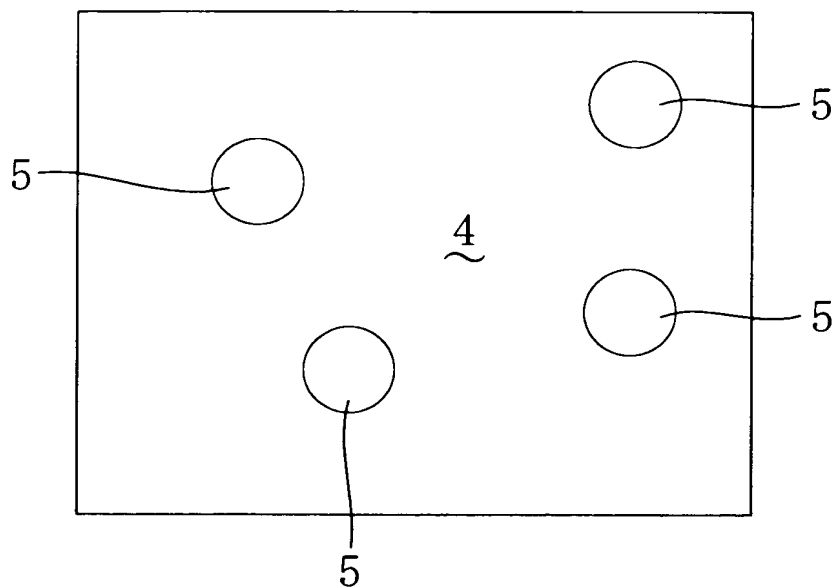


【書類名】 図面

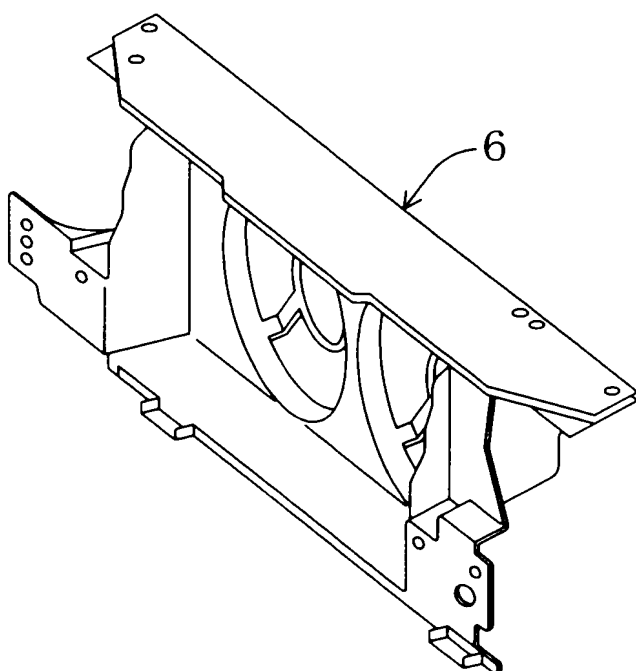
【図 1】



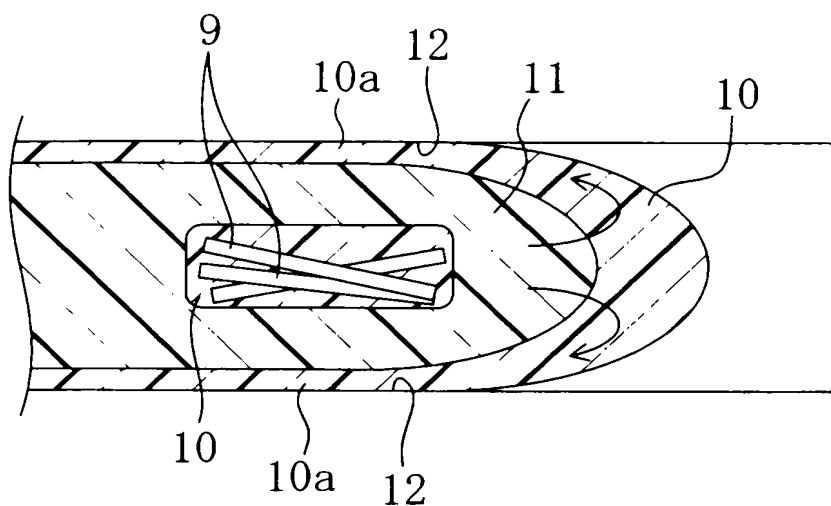
【図 2】



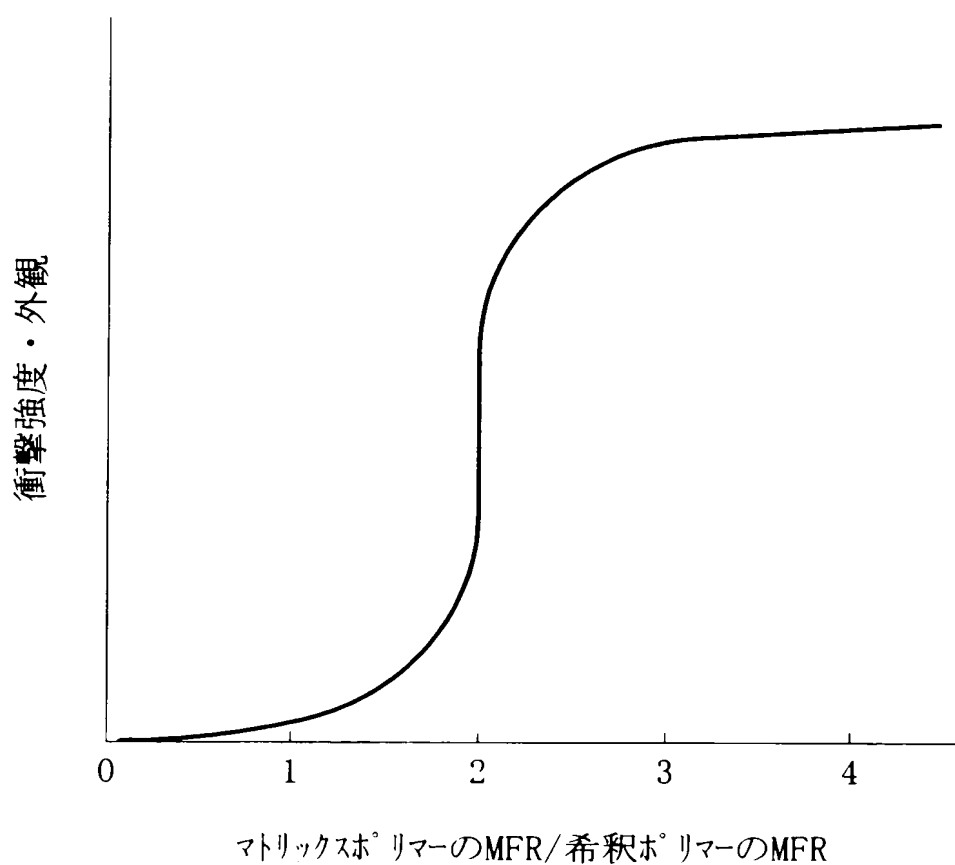
【図 3】



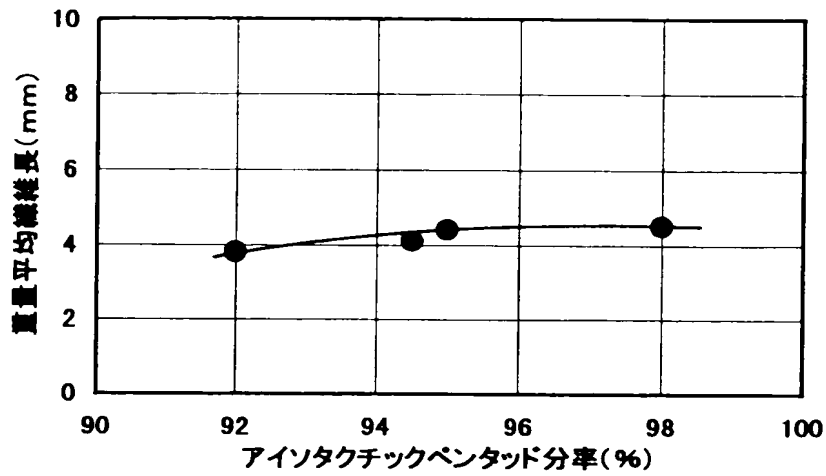
【図 4】



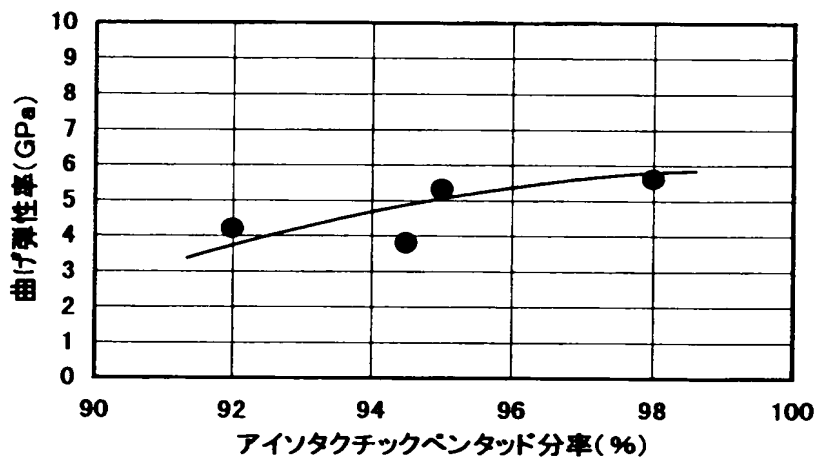
【図 5】



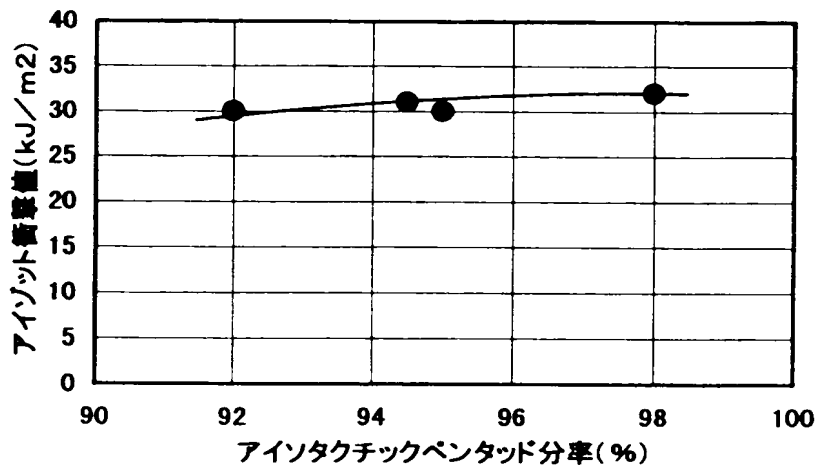
【図 6】



( a )

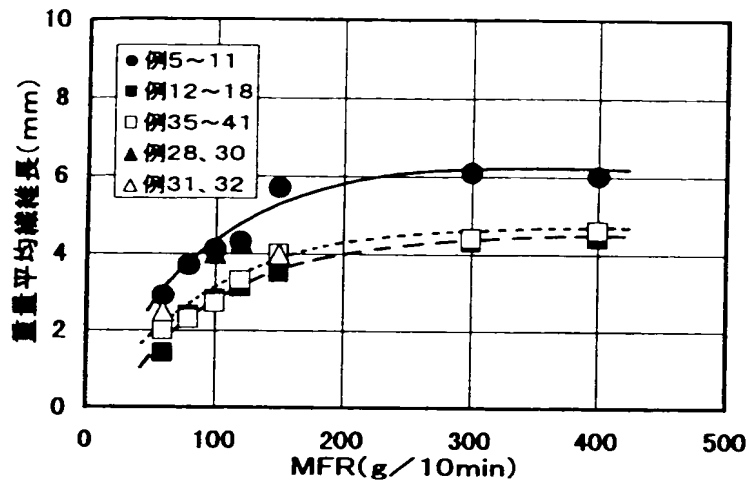


( b )

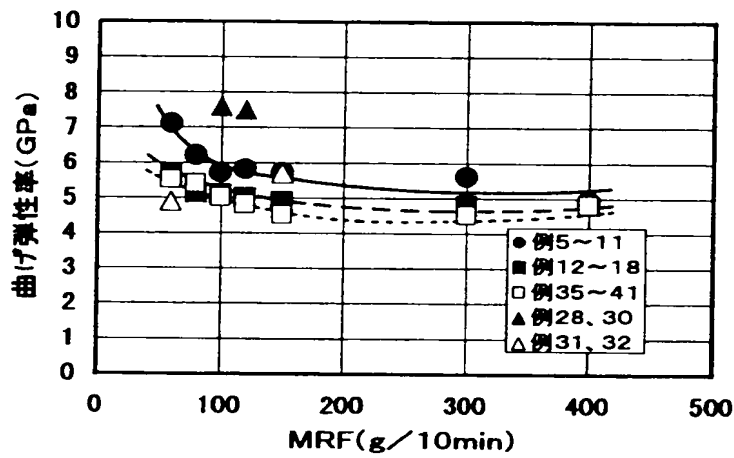


( c )

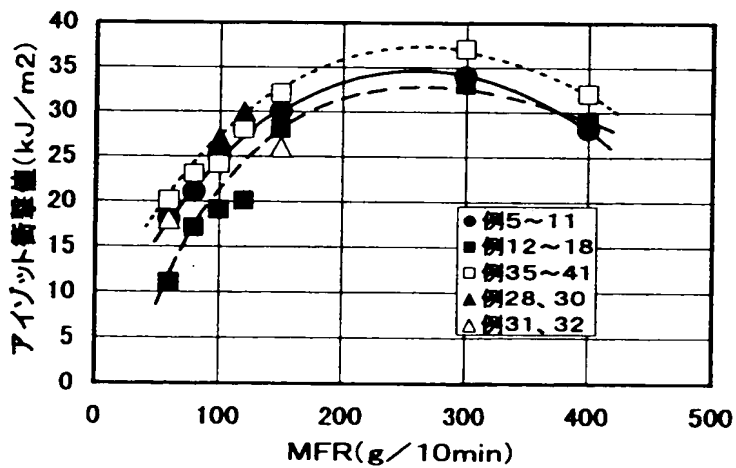
【図 7】



( a )

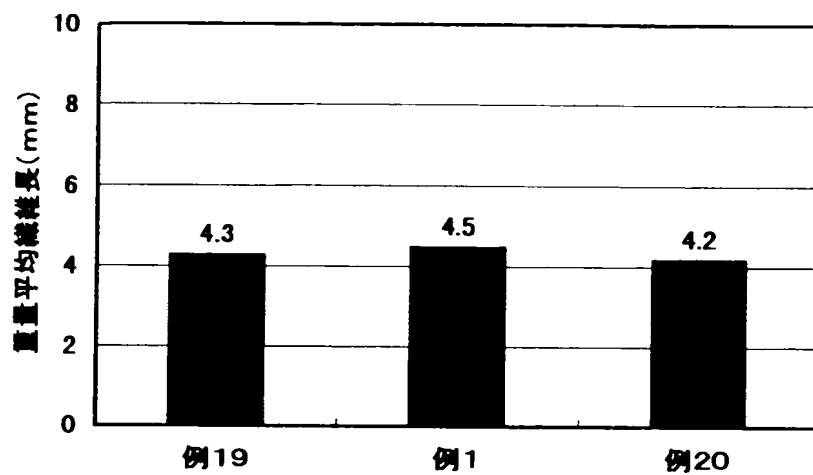


( b )

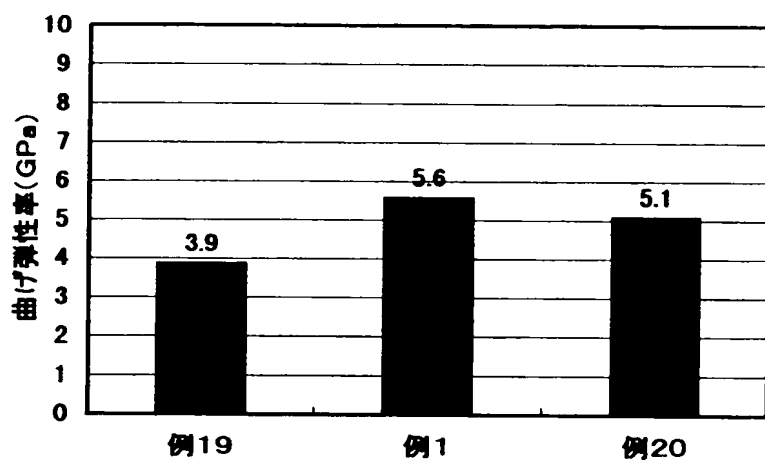


( c )

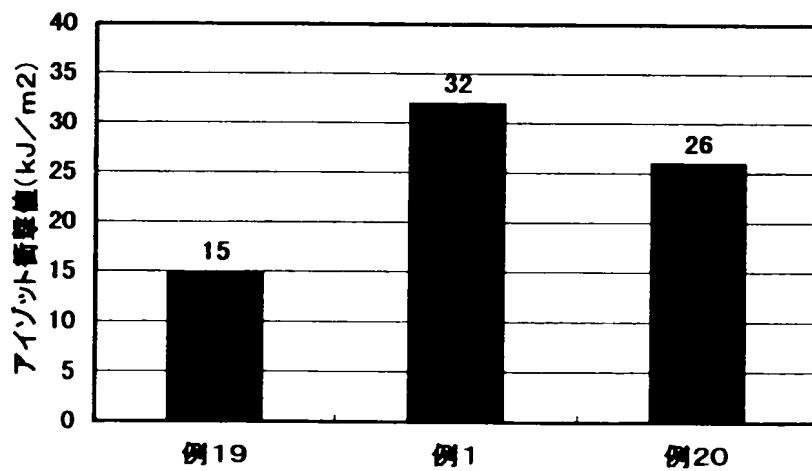
【図 8】



( a )

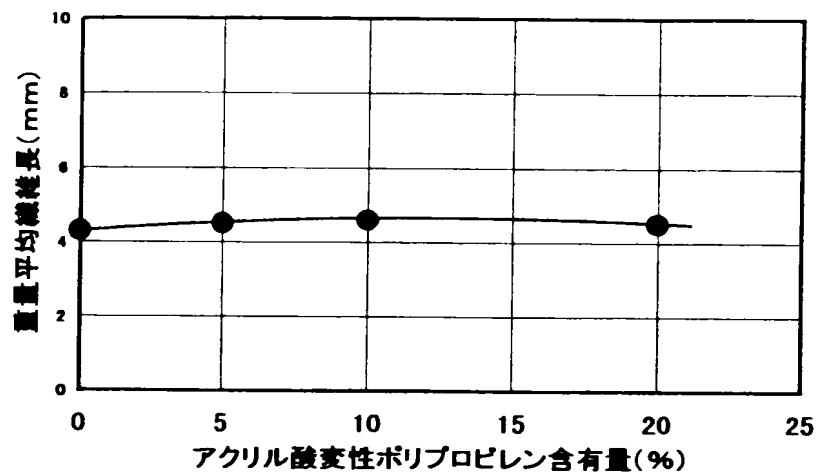


( b )

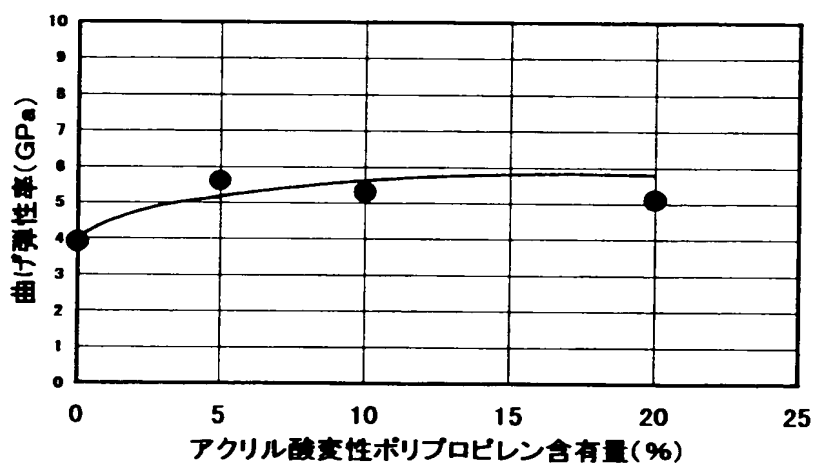


( c )

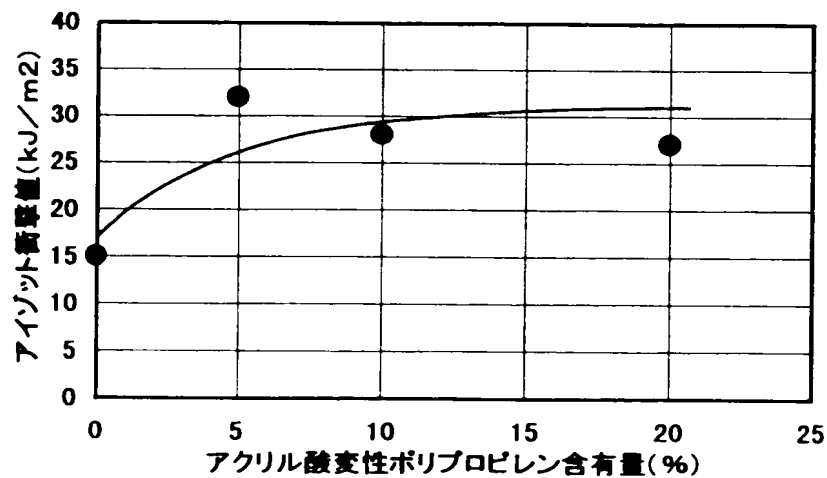
【図 9】



( a )

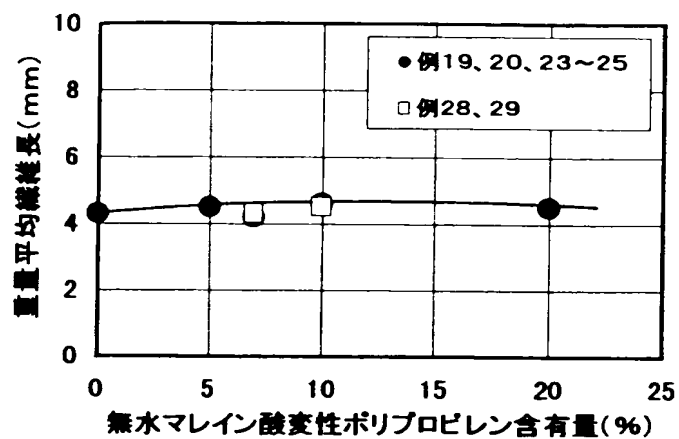


( b )

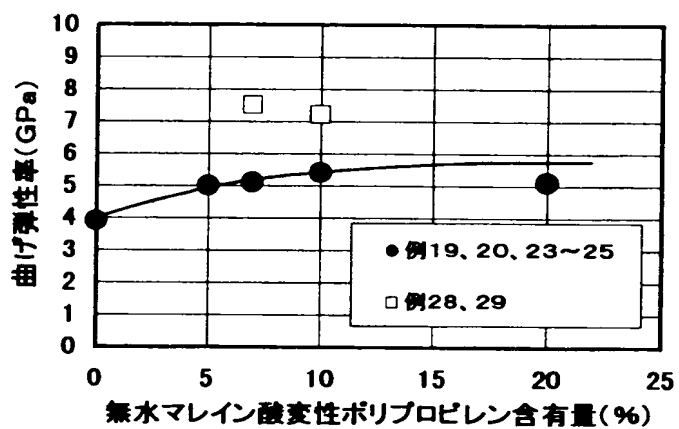


( c )

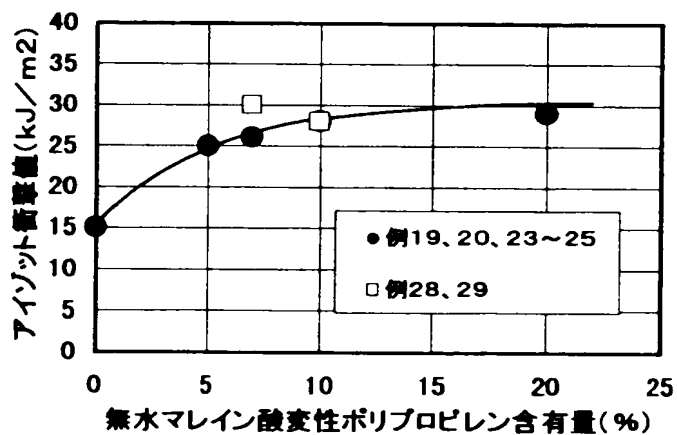
【図 1 0】



( a )



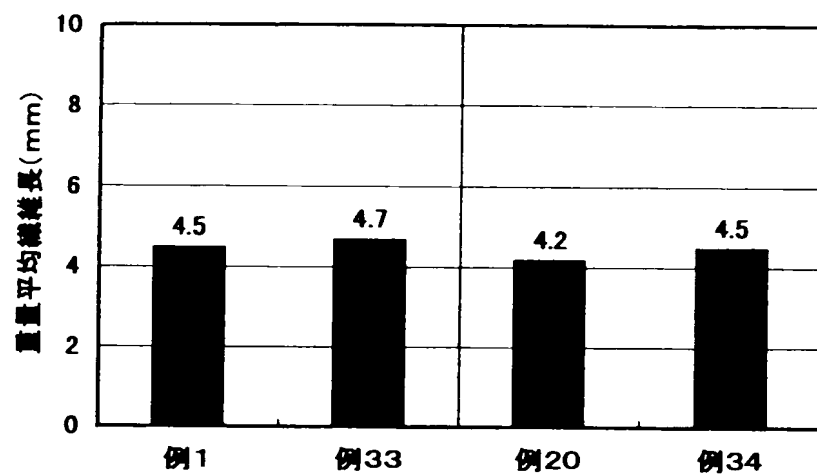
( b )



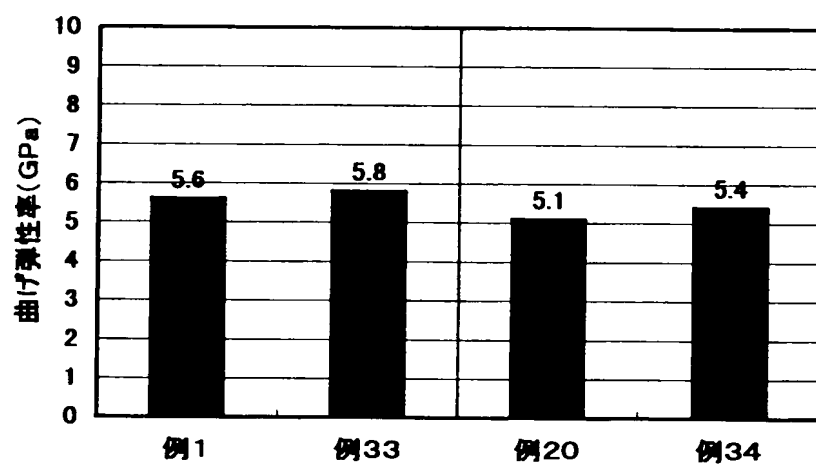
( c )



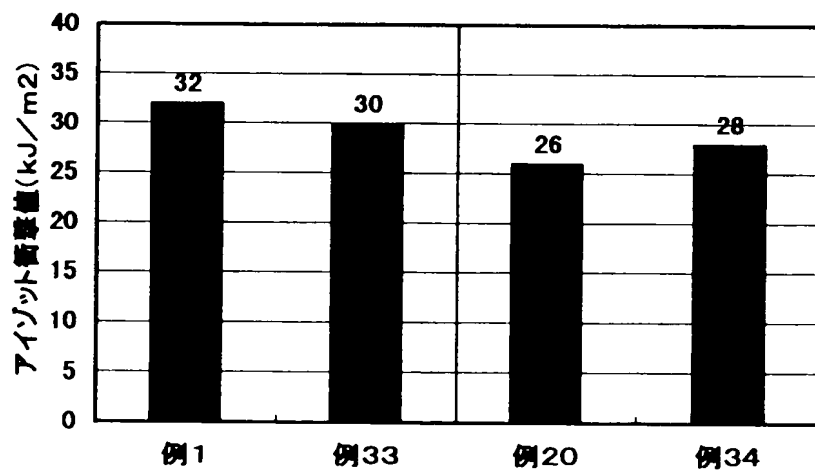
【図11】



( a )

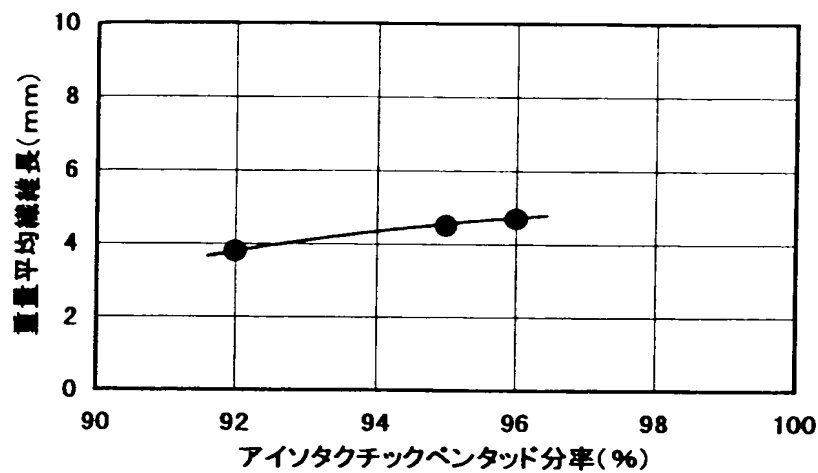


( b )

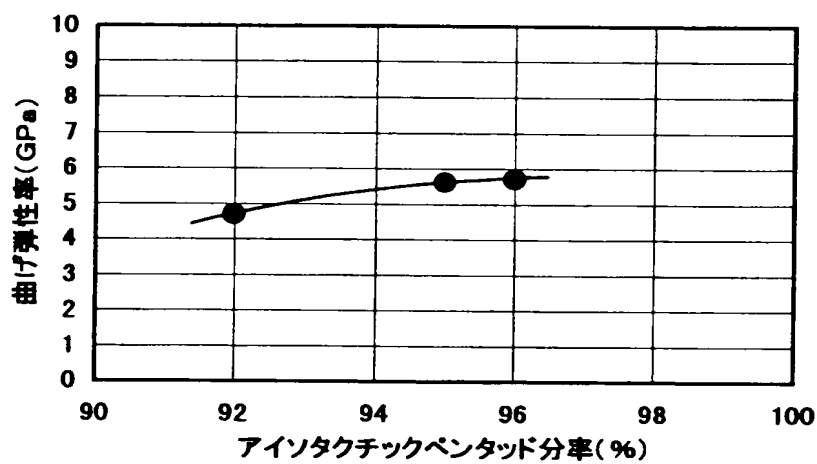


( c )

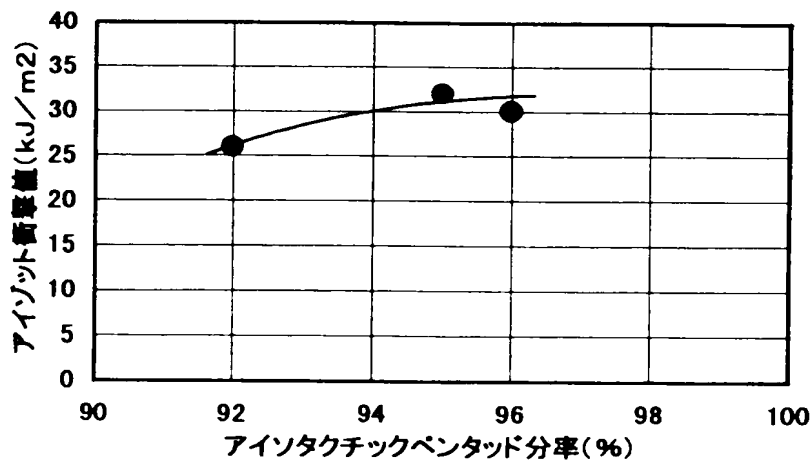
【図 1 2】



( a )



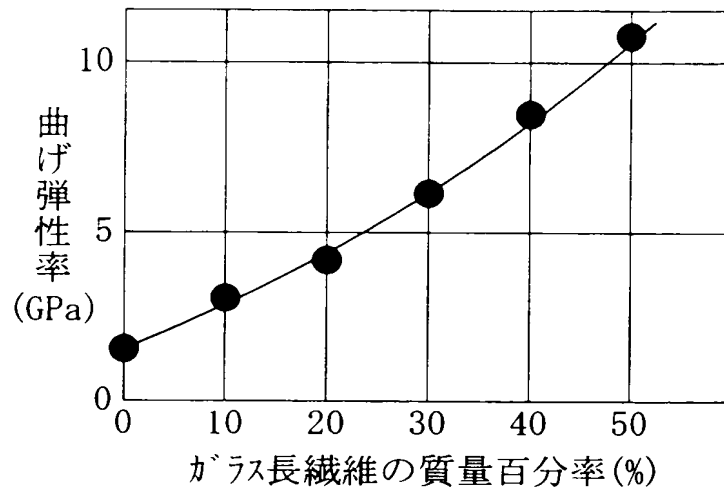
( b )



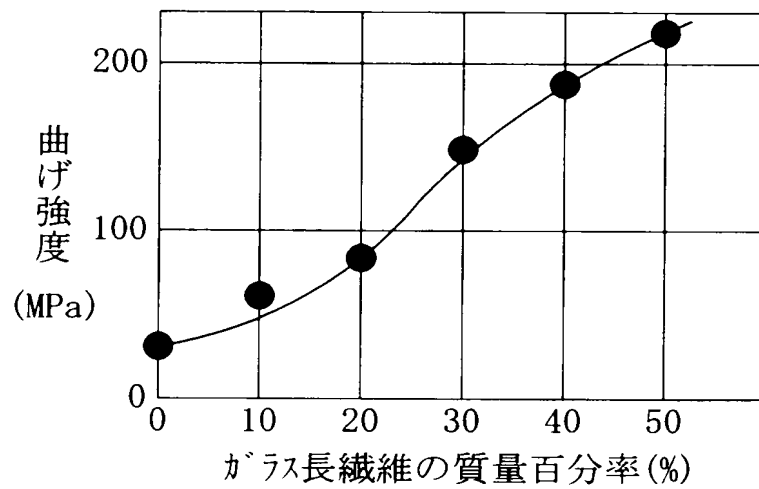
( c )

【図 1 3】

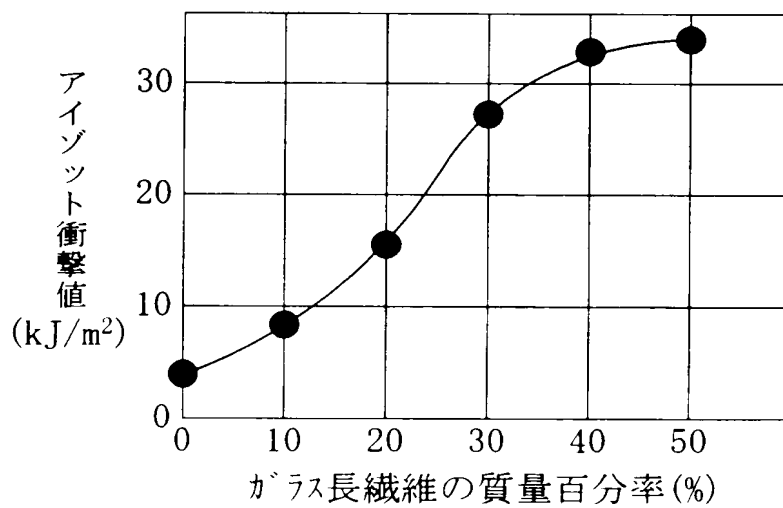
(a)



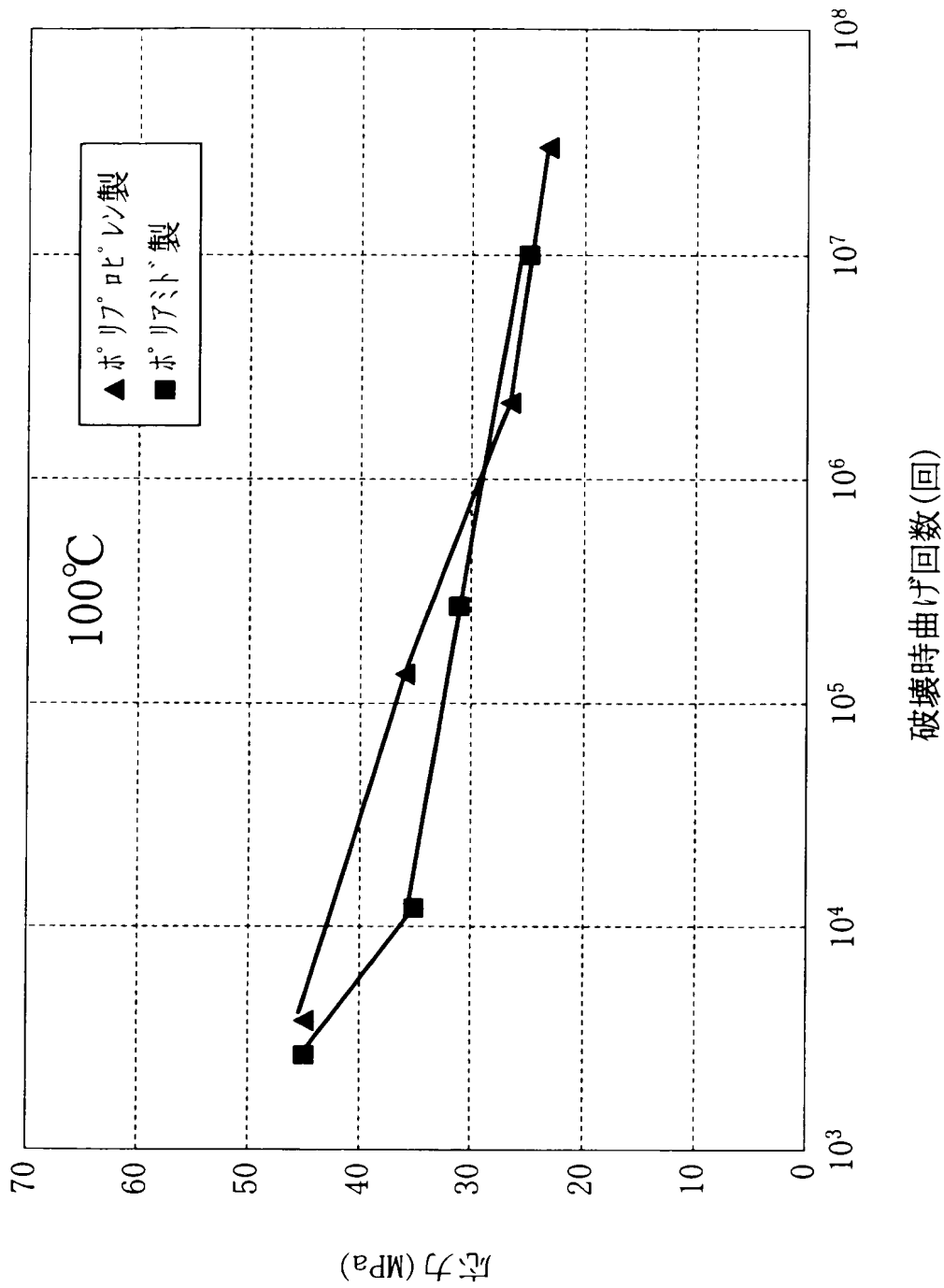
(b)



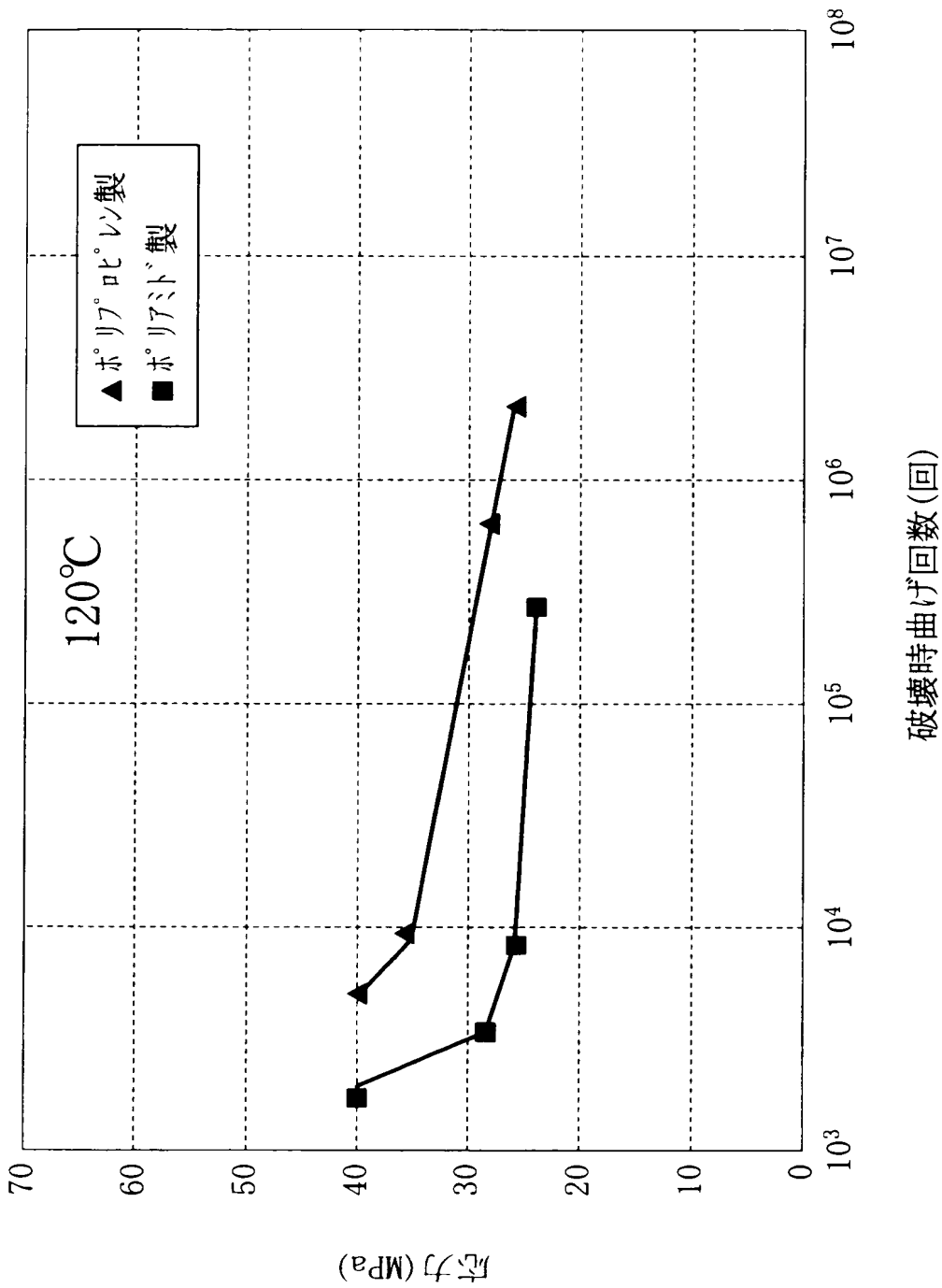
(c)



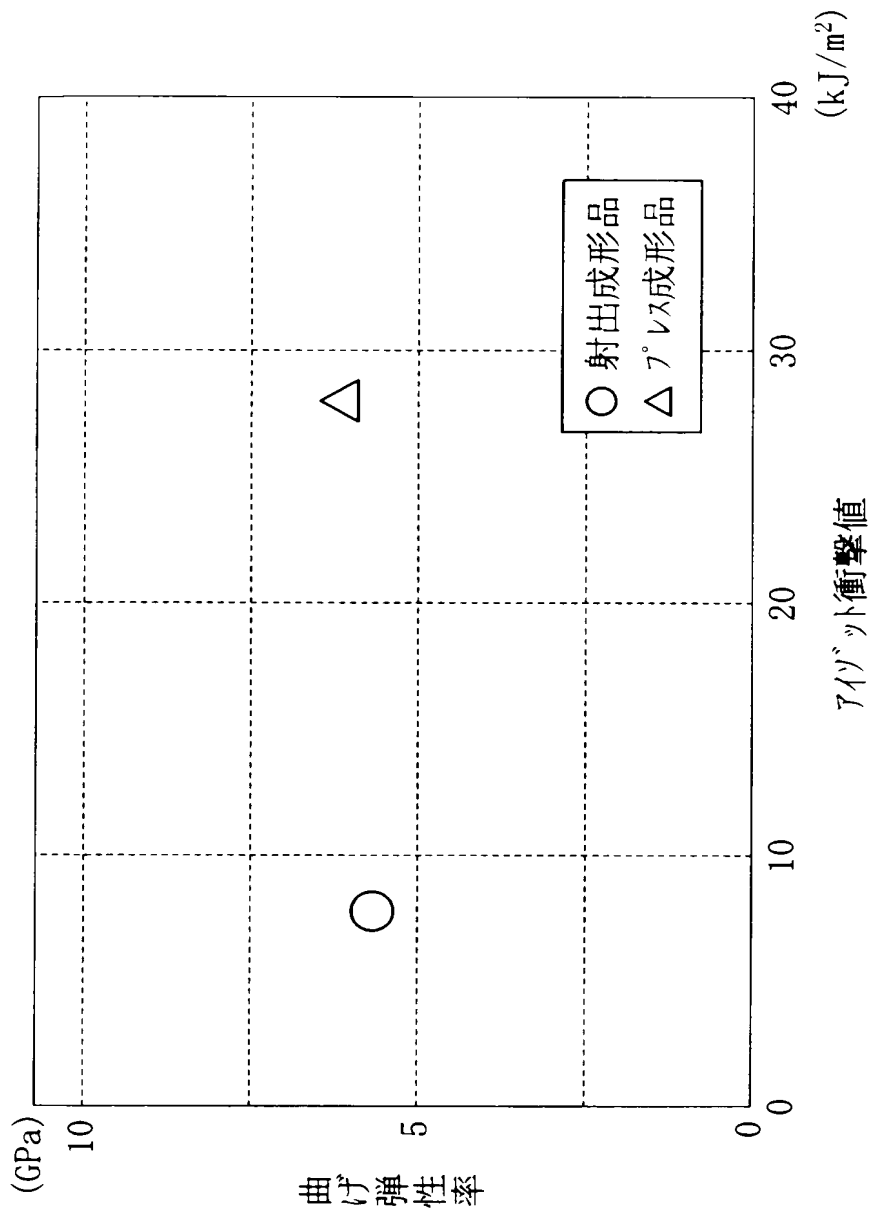
【図 1 4】



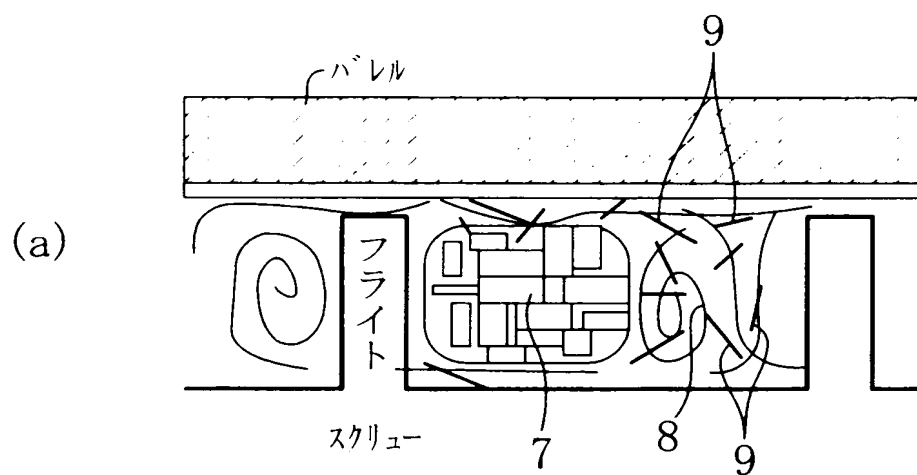
【図 1 5】



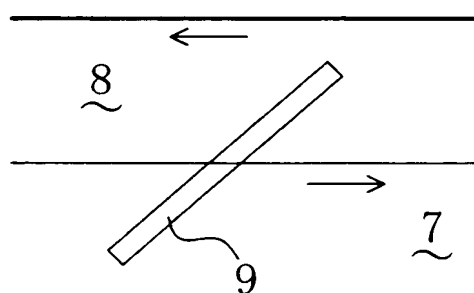
【図 1 6】



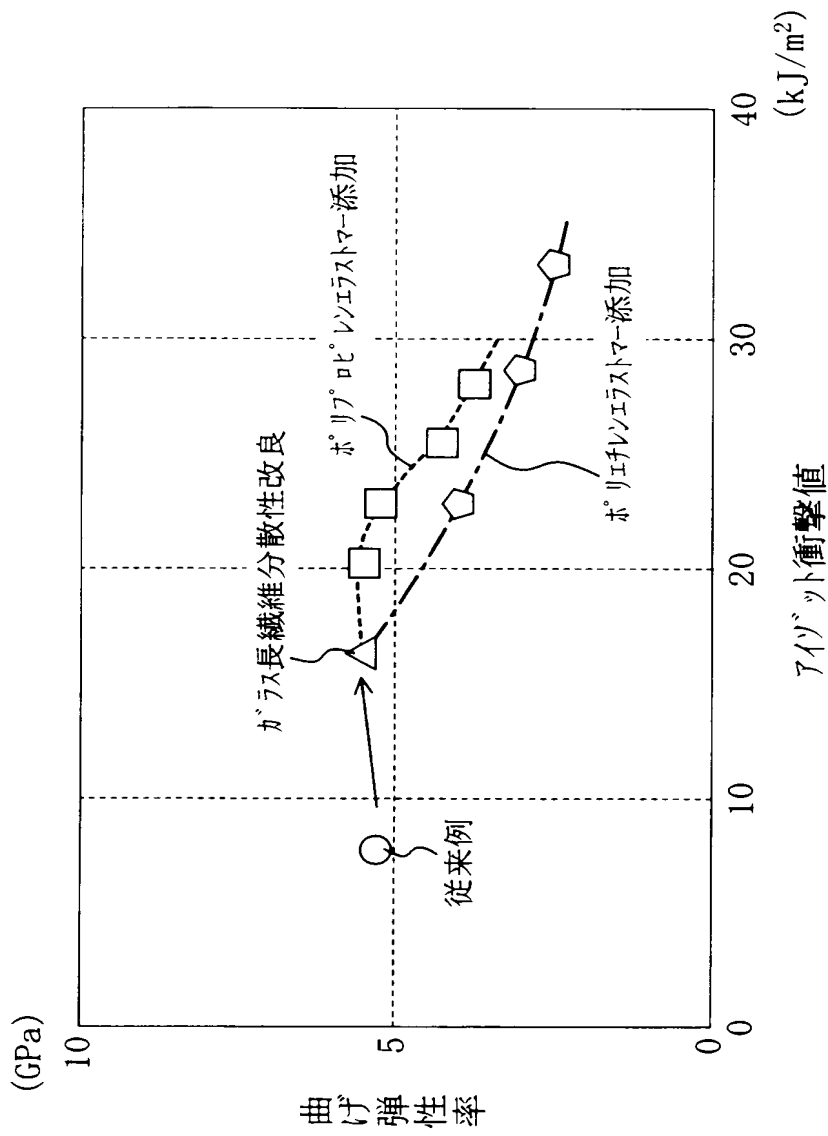
【図 1 7】



(b)



【図 1 8】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 成形加工時におけるガラス長繊維の折損を抑制でき、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品を成形することができる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を得る。

【解決手段】 マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体を備えた成形用ガラス長繊維強化樹脂材料において、マトリックスポリマーを、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し且つメルトフローレートが100～300g/10minであるものとし、ガラス長繊維を全体質量に対して質量百分率で30～50%含まれるようにする。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 3 1 3 7 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 2 日
[変更理由]	新規登録
住 所	広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号
氏 名	マツダ株式会社